

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-036979

(43)Date of publication of application : 07.02.2003

(51)Int.Cl.

H05B 33/22
 C08G 63/685
 C08K 5/00
 C08L 67/00
 C09K 11/06
 H05B 33/14

(21)Application number : 2001-221292

(71)Applicant : FUJI XEROX CO LTD

(22)Date of filing : 23.07.2001

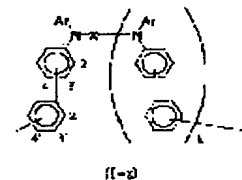
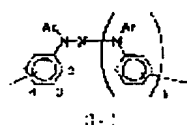
(72)Inventor : OZAKI TADAYOSHI
 HIROSE HIDEKAZU
 OKUDA DAISUKE
 YONEYAMA HIROTO
 SEKI MIEKO
 MASHITA KIYOKAZU
 AGATA TAKESHI
 SATO KATSUHIRO
 NUKADA KATSUMI
 IWASAKI MASAHIRO

(54) ORGANIC ELECTRIC FIELD LIGHT-EMITTING ELEMENT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic EL element which has a sufficient luminance, which is superior in a stability and durability, and in which realization of a large area is possible and manufacturing is easy.

SOLUTION: In the electric field light-emitting element constituted of one or plural organic compound layers pinched between a pair of electrodes at least one of which is transparent or semi-transparent, at least one layer of the organic compound layer contains not less than one kind of hole transporting polyester composed of repetition units to contain at least one kind selected from a structure shown by formulae (I-1) and (I-2) as a part structure.



* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

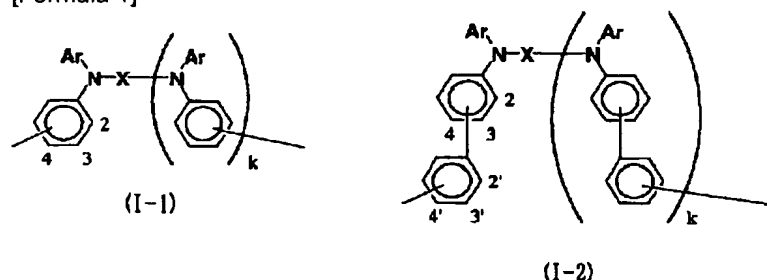
1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

[Claim(s)]

[Claim 1] In electroluminescence devices which comprise one or more organic compound layers pinched by inter-electrode [of a couple transparent / at least one side / or translucent], Organic electroluminescence devices containing one or more sorts of hole transportability polyester which consists of a repeating unit in which at least one layer of this organic compound layer contains as a substructure at least one sort chosen from structure shown by a following general formula (I-1) and (I-2).

[Formula 1]



[Ar into a general formula (I-1) (I-2), A fused aromatic ring with 2-10 aromatic rings which are not replaced [a polynuclear aromatic ring with 3-10 aromatic rings which are not replaced / the aromatic ring which is not replaced / substitution or /, substitution, or /, substitution or] is expressed, X expresses the divalent aromatic group which is not replaced [substitution or], and k expresses 0 or 1.]

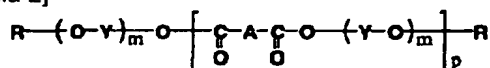
[Claim 2] Said organic compound layer comprises a hole transporting bed and a luminous layer at least, The organic electroluminescence devices according to claim 1 which contain one or more sorts of hole transportability polyester which consists of a repeating unit in which this hole transporting bed contains as a substructure at least one sort chosen from structure shown by said general formula (I-1) and (I-2), and are characterized by things.

[Claim 3] It is constituted only from a luminous layer by said organic compound layer, and this luminous layer, The organic electroluminescence devices according to claim 1 which contain one or more sorts for hole transportability polyester which consists of a repeating unit which contains as a substructure at least one sort chosen from structure shown by said general formula (I-1) and (I-2), and are characterized by things.

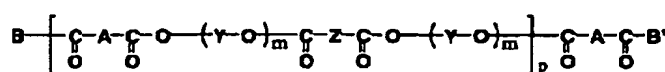
[Claim 4] The organic electroluminescence devices according to claim 3, wherein said luminous layer includes charge transport nature material.

[Claim 5] Hole transportability polyester which consists of a repeating unit which contains as a substructure at least one sort chosen from structure shown by said general formula (I-1) and (I-2), The organic electroluminescence devices according to any one of claims 1 to 4 being hole transportability polyester shown by following general formula (II) or (III).

[Formula 2]



(II)



(III)

[General formula (II) or (III) Naka, and A express at least one sort chosen from the structure shown by the above-mentioned general formula (I-1) and (I-2), R expresses the aralkyl group which is not replaced [the aryl group which is not replaced / a hydrogen atom, an alkyl group, substitution, or /, substitution, or], Y expresses dihydric alcohol residue, and Z expresses divalent carboxylate residue, and B and B', They are basis-O-(Y-O) m-R or basis-O-(Y-O) m-CO-Z-CO-O-R' (here) independently, respectively. It has the same meaning, R' expresses the aralkyl group which is not replaced [the aryl group which is not replaced / an alkyl group, substitution, or /, substitution, or] that R, Y, and Z described above, and m expresses the integer of 1-5. It expresses, m expresses the integer of 1-5, and p expresses the integer of 5-5,000.]

[Translation done.]

* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]This invention relates to the organic electroluminescence devices using specific hole transportability polyester in detail about organic electroluminescence devices (henceforth an "organic EL device").

[0002]

[Description of the Prior Art]Electroluminescence devices (it is hereafter described as a "EL element") are all the solid state components of self-luminescence.

Since visibility is high and strong also against a shock, application is expected widely.

Although what used the inorganic fluophor is in use, since the volts alternating current beyond 200V is required for a drive, a manufacturing cost is high, and luminosity has problems, such as imperfection, now.

[0003]On the other hand, although it started using single crystals, such as anthracene, at first, when it was a single crystal, thickness is as thick as about 1 mm, and the driver voltage beyond 100V was required for the EL element research using an organic compound. Therefore, thin film-ization by vacuum deposition is tried (ThinSolid Films, Vol.94,171 (1982)).

However, since the thin film obtained by this method still had driver voltage as high as 30V, and the density of the electron and hole career in a film was low and the generation probability of the photon by the recombination of a career was low, sufficient luminosity was not obtained.

[0004]However, in the EL element of the functional discrete type which laminated the thin film of a hole transportability organicity low molecular weight compound and a fluorescence nature organicity low molecular weight compound with electron transportation ability one by one with the vacuum deposition method in recent years, That from which high-intensity [more than 1000 cd/m²] is obtained is reported by the about [10V] low voltage (Appl.Phys.Lett., Vol.51,913 (1987)), and research and development of the EL element of a lamination type have been performed actively since then.

[0005]However, in this type of EL element, in order to be easy to produce a pinhole in order to form a thin film of 0.1 micrometer or less in two or more deposition processes, and to obtain sufficient performance, it is required to control thickness by the bottom of the conditions managed severely. Therefore, there is a problem that productivity is low and large-area-izing is difficult. Since this EL element is driven with high current density called several mA/cm², it generates a lot of Joule heat. For this reason, the hole transportability low molecular weight compound and fluorescence nature organicity low molecular weight compound which were produced by vacuum evaporation by the amorphous vitreous state crystallized gradually, at the end, it dissolved, many phenomena in which a fall and dielectric breakdown of luminosity arose were seen, and it also had the problem that the life of an element fell as a result.

[0006]Use the starburst amine from which an amorphous vitreous state stable as a hole carrying material is acquired for solution of the problem about the thermal stability of an EL element, or Then, (collection of 40th applied-physics relation union lecture meeting drafts 30 a-SZK-14 (1993) etc.), The EL element which used the polymer which introduced the triphenylamine into the side chain of polyphosphazene (collection of 42nd polymers debate drafts 20J21 (1993)) is reported. However, since these energy barriers that originate in the ionization potential of a hole carrying material if independent exist, the hole pouring nature from the anode or hole pouring nature to a luminous layer is not satisfied. In the case of the former starburst amine, since solubility is small, in the case of that it is difficult for refining to raise purity difficultly and the latter polymer, problems – high current density is not obtained and sufficient luminosity is not obtained – also exist.

[0007]On the other hand aiming at solution of these problems, research and development are furthered also about the EL element of layer structure, Use conductive polymers, such as poly (p-phenylenevinylene), or (Nature, Vol.357, 477 (1992), etc.), Although the element (collection of 38th applied-physics relation union lecture meeting drafts 31 p-G-12 (1991)) which mixed an electron transport material and the fluorochrome into the hole transportability polyvinyl carbazole is

proposed, luminosity, luminous efficiency, etc. are still less than the lamination type EL element using an organic low molecular weight compound.

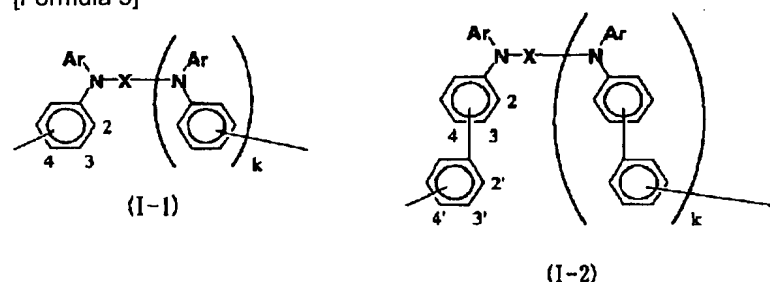
[0008]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] This invention solves many problems in said former, and makes it a technical problem to attain the following purposes. namely, -- the purpose of this invention has sufficient luminosity, and is excellent in stability and endurance, and large-area-izing is possible for it -- manufacture -- it is in providing an easy organic EL device.

[0009]

[Means for Solving the Problem] Hole transportability polyester which contains as a substructure at least one sort chosen from structure shown by a following general formula (I-1) and (I-2) as a result of examining a hole carrying material wholeheartedly, in order to attain the above-mentioned purpose, It finds out having the hole pouring characteristic suitable as an organic EL device, Hall mobility, and thin-film-forming ability, and came to complete this invention. Namely, at least one side is what comprises one or more organic compound layers pinched by inter-electrode [of a transparent or translucent couple], At least one layer of an organic compound layer is an organic EL device containing at least one sort of hole transportability polyester which consists of a repeating unit which contains as a substructure at least one sort chosen from structure shown by a following general formula (I-1) and (I-2).

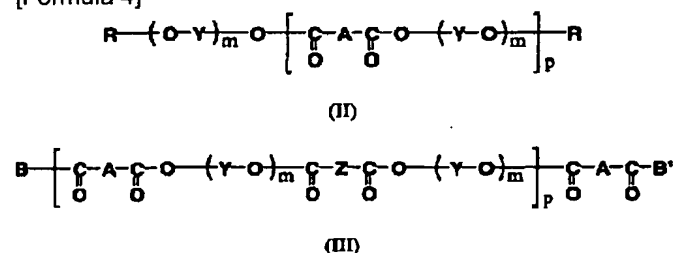
[Formula 3]



[Ar into a general formula (I-1) (I-2), A fused aromatic ring with 2-10 aromatic rings which are not replaced [a polynuclear aromatic ring with 3-10 aromatic rings which are not replaced / the aromatic ring which is not replaced / substitution or /, substitution, or /, substitution or] is expressed, X expresses the divalent aromatic group which is not replaced [substitution or], and k expresses 0 or 1.]

[0010] As this hole transportability polyester, the polyester shown by following general formula (II) or (III) can be mentioned suitably.

[Formula 4]



[General formula (II) or (III) Naka, and A express at least one sort chosen from the structure shown by the above-mentioned general formula (I-1) and (I-2), R expresses the aralkyl group which is not replaced [the aryl group which is not replaced / a hydrogen atom, an alkyl group, substitution, or /, substitution, or], Y expresses dihydric alcohol residue, and Z expresses divalent carboxylate residue, and B and B', It is basis-O-(Y-O) m-R or basis-O-(Y-O) m-CO-Z-CO-O-R' (here) independently, respectively. It has the same meaning, R' expresses the aralkyl group which is not replaced [the aryl group which is not replaced / an alkyl group, substitution, or /, substitution, or] that R, Y, and Z described above, and m expresses the integer of 1-5. It expresses, m expresses the integer of 1-5, and p expresses the integer of 5-5,000.]

[0011] In an organic EL device of this invention, an organic compound layer, a thing of a functional discrete type -- for example, it comprising a hole transporting bed and a luminous layer at least, and, A thing containing hole transportability polyester which consists of a repeating unit which contains as a substructure at least one sort chosen from structure by which this hole transporting bed is shown by said general formula (I-1) and (I-2), It comes to comprise [only a luminous layer] what combines carrier transport ability and luminescence ability, i.e., an organic compound layer, Any may be

sufficient although hole transportability polyester which consists of a repeating unit which contains as a substructure at least one sort chosen from structure by which this luminous layer is shown by said general formula (I-1) and (I-2) is contained.

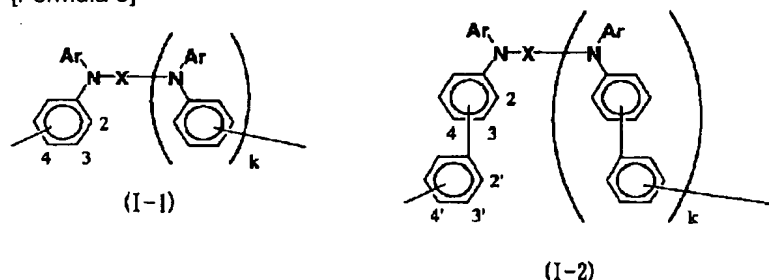
[0012] In an organic EL device of this invention, when an organic compound layer comprises only a luminous layer, charge transport nature material (above hole carrying materials other than specific hole transportability polyester, an electron transport material) may also be included in this luminous layer.

[0013]

[Embodiment of the Invention] It comprises one or more organic compound layers pinched by inter-electrode [of the couple which consists of the anode that the organic EL device of this invention has at least transparent one side, or translucent and negative pole], The hole transportability polyester in which at least one layer of this organic compound layer consists of repeating units which contain as a substructure at least one sort chosen from the structure shown by a following general formula (I-1) and (I-2). It contains one or more sorts of (it only being hereafter called "hole transportability polyester"). The organic EL device of this invention is having a layer containing said hole transportability polyester, has sufficient luminosity and is excellent in stability and endurance. By using said hole transportability polyester, large-area-izing is possible and it can manufacture easily.

[0014]

[Formula 5]

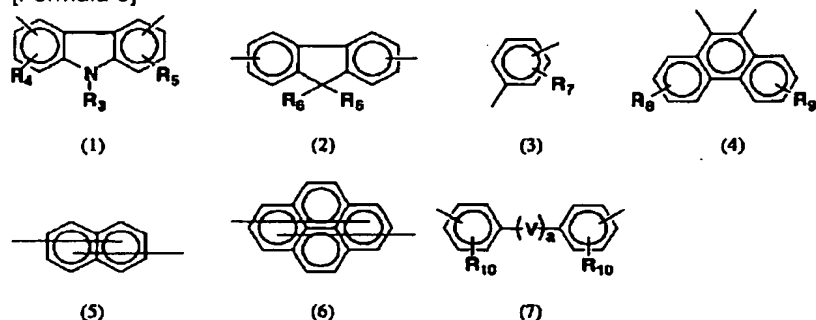


[0015] Ar expresses a fused aromatic ring with 2-10 aromatic rings which are not replaced [a polynuclear aromatic ring with 3-10 aromatic rings which are not replaced / the aromatic ring which is not replaced / substitution or /, substitution, or /, substitution, or] into a general formula (I-1) (I-2). As a substituent, the aryl group which is not replaced [an alkyl group, an alkoxy group, a substituted amino group, a halogen atom, substitution or], an aralkyl group, etc. are mentioned. As an alkyl group, the thing of the carbon numbers 1-10 is preferred, for example, a methyl group, an ethyl group, a propyl group, an isopropyl group, etc. are mentioned. As an alkoxy group, the thing of the carbon numbers 1-10 is preferred, for example, a methoxy group, an ethoxy group, a propoxy group, an isopropoxy group, etc. are mentioned. As an aryl group, the thing of the carbon numbers 6-20 is preferred, the thing of the carbon numbers 7-20 is preferred as an aralkyl group to which a phenyl group, a tolyl group, etc. are mentioned, for example, benzyl, a phenethyl group, etc. are mentioned. As a substituent of a substituted amino group, an alkyl group, an aryl group, an aralkyl group, etc. are mentioned, and an example is as above-mentioned. As a substituent of a substitution aryl group and a substitution aralkyl group, a hydrogen atom, an alkyl group, an alkoxy group, a substituted amino group, a halogen atom, etc. are mentioned.

[0016] X express a divalent aromatic group which is not replaced [substitution or] into a general formula (I-1) (I-2), and a basis specifically chosen from following formula (1) - (7) is mentioned.

[0017]

[Formula 6]

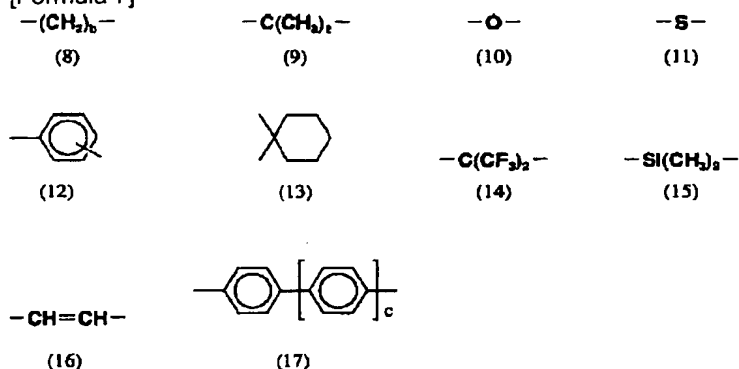


[0018] R₃ among formula (1) - (7) A hydrogen atom, the alkyl group of the carbon numbers 1-4, Express the aralkyl group

which is not replaced [the phenyl group which is not replaced / substitution or /, substitution or], and $R_4 - R_{10}$, Expressing independently the aralkyl group which is not replaced [the phenyl group which is not replaced / a hydrogen atom, the alkyl group of the carbon numbers 1-4, the alkoxy group of the carbon numbers 1-4, substitution, or /, substitution, or], or a halogen atom, respectively, a means 0 or 1 and V expresses the basis chosen from following formula (8) - (17). b means the integer of 1-10 among (8) - (17), and c means the integer of 1-3.

[0019]

[Formula 7]



[0020] Especially when X has the biphenylene structure shown with the following structural formula (A) or (B), As reported to "The Sixth International Congress on Advances in Non-impact Printing Technologies, 306" (1990), From polymer with high mobility being obtained, it is especially desirable.

[0021]

[Formula 8]


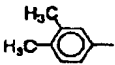

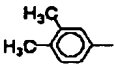




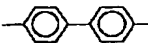

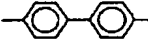

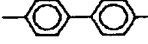

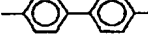
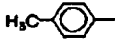
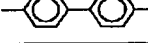
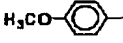
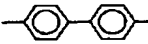
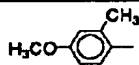
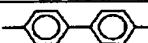

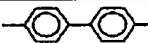

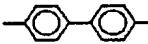
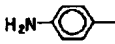
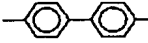
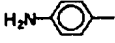
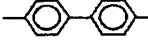
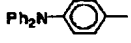
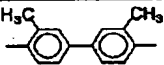



[0022] k expresses 0 or 1 into a general formula (I-1) (I-2).

[0023] Hereafter, an example of structure shown by a general formula (I-1) and (I-2) is shown. This invention is not necessarily limited to these examples. In a table, the structure numbers 1-40, 72-100 show an example of structure shown by a general formula (I-1), and the structure numbers 41-71, 101-124 show an example of structure shown by a general formula (I-2).



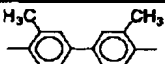

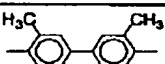


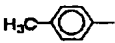
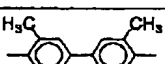
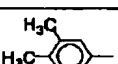
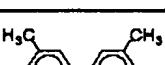

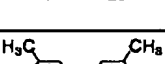
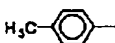

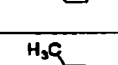

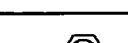

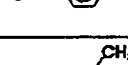


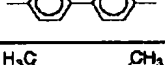

[0024]

[Table 1]

構造	k	X	Ar	結合位置
1.	0			3
2	0			4
3	0			3
4	0			4
5	1			2
6	1			3
7	1			4
8	1			3
9	1			4
10	1			4
11	1			3
12	1			4
13	1			3
14	1			4
15	1			3
16	1			3

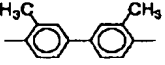
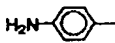
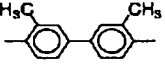
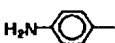
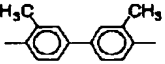
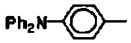
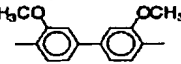

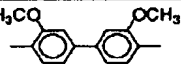
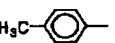


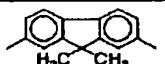

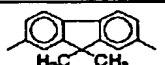


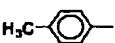

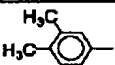


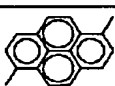

[0025]

[Table 2]

構造	k	X	Ar	結合位置
17	1			4
18	1			3
19	1			3
20	1			3
21	1			3
22	1			3
23	1			4
24	1			4
25	1			3
26	1			4
27	1			3
28	1			4

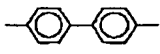

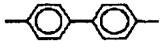
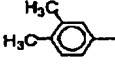
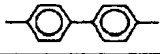

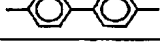
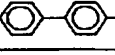
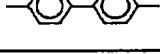
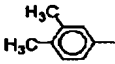

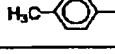

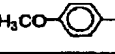

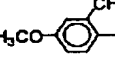
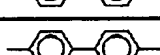
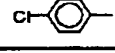

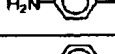
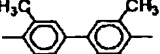

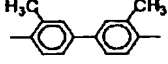

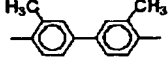

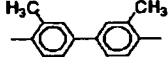
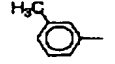
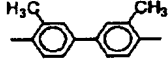
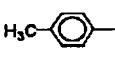
[0026]

[Table 3]

構造	k	X	Ar	結合位置
29	1			3
30	1			4
31	1			4
32	1			3
33	1			3
34	1			3
35	1			3
36	1			3
37	1			3
38	1			3
39	1			3
40	1			3

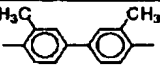
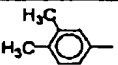
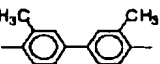

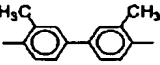
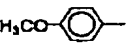
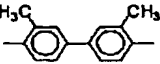
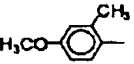
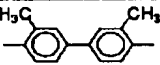
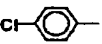
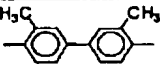
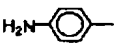
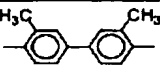
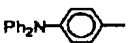
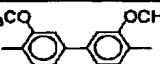

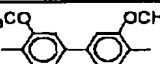
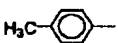




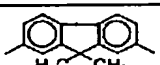

[0027]

[Table 4]

構造	k	X	Ar	結合位置
41	0			4, 4'
42	0			4, 4'
43	1			4, 4'
44	1			4, 4'
45	1			4, 4'
46	1			4, 4'
47	1			4, 4'
48	1			4, 4'
49	1			4, 4'
50	1			4, 4'
51	1			4, 4'
52	1			4, 4'
53	1			4, 4'
54	1			4, 4'
55	1			4, 4'


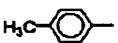

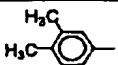
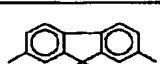

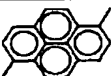

[0028]

[Table 5]

構造	k	X	Ar	結合位置
56	1			4, 4'
57	1			4, 4'
58	1			4, 4'
59	1			4, 4'
60	1			4, 4'
61	1			4, 4'
62	1			4, 4'
63	1			4, 4'
64	1			4, 4'
65	1			4, 4'
66	1			4, 4'
67	1			4, 4'

[0029]

[Table 6]

構造	k	X	Ar	結合位置
68	1			4, 4'
69	1			4, 4'
70	1			4, 4'
71	1			4, 4'


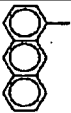
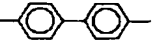
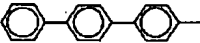
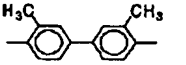

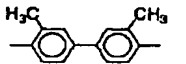

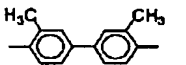

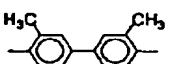

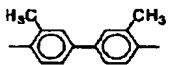
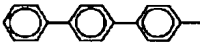
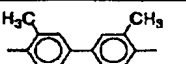

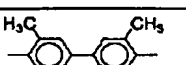
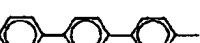
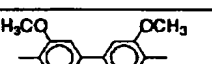
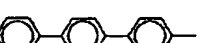
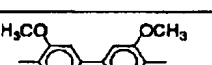

[0030]

[Table 7]

構造	k	X	Ar	結合位置
72	0			3
73	0			2
74	0			3
75	0			4
76	0			4
77	1			4
78	1			4
79	1			2
80	1			3
81	1			3
82	1			4
83	1			3
84	1			4

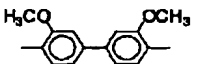

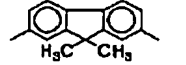
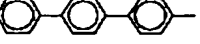
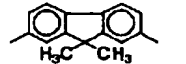

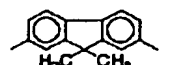

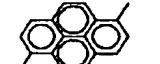
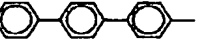
[0031]

[Table 8]

構造	k	X	Ar	結合位置
85	1			4
86	1			4
87	1			3
88	1			3
89	1			4
90	1			4
91	1			3
92	1			4
93	1			4
94	1			4
95	1			4

[0032]

[Table 9]

構造	k	X	Ar	結合位置
96	1			4
97	1			4
98	1			4
99	1			4
100	1			4

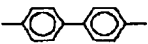
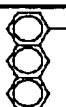
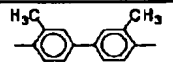



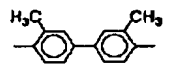

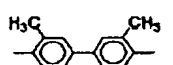



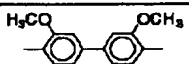

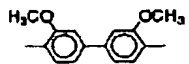

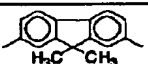

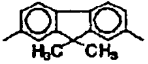

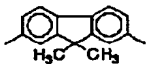

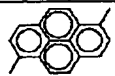

[0033]

[Table 10]

構造	k	X	Ar	結合位置
101	0			4, 4'
102	0			4, 4'
103	0			4, 4'
104	0			4, 4'
105	0			4, 4'
106	0			4, 4'
107	0			4, 4'
108	0			4, 4'
109	1			4, 4'
110	1			4, 4'
111	1			4, 4'
112	1			4, 4'

[0034]

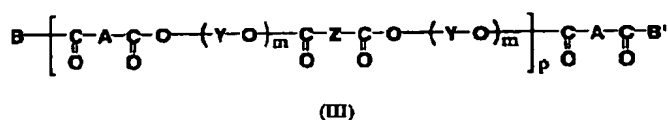
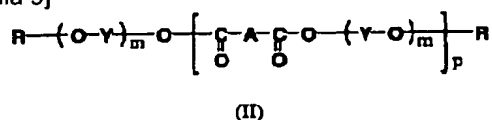
[Table 11]

構造	k	X	Ar	結合位置
113	1			4, 4'
114	1			4, 4'
115	1			4, 4'
116	1			4, 4'
117	1			4, 4'
118	1			4, 4'
119	1			4, 4'
120	1			4, 4'
121	1			4, 4'
122	1			4, 4'
123	1			4, 4'
124	1			4, 4'

[0035] As hole transportability polyester which consists of a repeating unit which contains as a substructure at least one sort chosen from the structure shown by a general formula (I-1) and (I-2), the hole transportability polyester shown by following general formula (II) or (III) is used suitably.

[0036]

[Formula 9]



[0037] General formula (II) or (III) Naka, and A express at least one sort chosen from structure shown by the above-mentioned general formula (I-1) and (I-2), and two or more kinds of structures A may be included in one polymer.

[0038] R expresses an aralkyl group which is not replaced [an aryl group which is not replaced / a hydrogen atom, an alkyl group, substitution, or /, substitution, or] among general formula (II) or (III). As an alkyl group, a thing of the carbon numbers 1-10 is preferred, for example, a methyl group, an ethyl group, a propyl group, an isopropyl group, etc. are mentioned. As an aryl group, a thing of the carbon numbers 6-20 is preferred, a thing of the carbon numbers 7-20 is preferred as an aralkyl group to which a phenyl group, a tolyl group, etc. are mentioned, for example, benzyl, a phenethyl

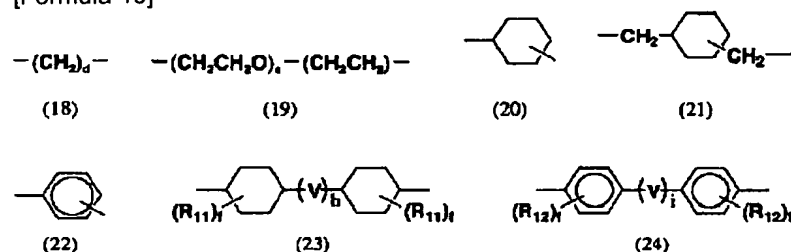
group, etc. are mentioned. As a substituent of a substitution aryl group and a substitution aralkyl group, a hydrogen atom, an alkyl group, an alkoxy group, a substituted amino group, a halogen atom, etc. are mentioned.

[0039]General formula (II) or (III) Naka, B, and B' expresses basis-O-(Y-O) m-R or basis-O-(Y-O) m-CO-Z-CO-O-R' independently, respectively. Although R, Y, and Z have the thing and the meaning here, R' expresses an aralkyl group which is not replaced [an aryl group which is not replaced / an alkyl group, substitution, or / substitution, or], m expresses an integer of 1-5 and p expresses an integer of 5-5,000, it is the range of 10-1,000 preferably.

[0040]Y expresses dihydric alcohol residue among general formula (II) or (III), and Z expresses divalent carboxylate residue. A basis as which Y and Z were specifically chosen from following formula (18) - (24) is mentioned.

[0041]

[Formula 10]






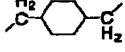







[0042] R_{11} and R_{12} among formula (18) - (24), Independently, respectively A hydrogen atom, the alkyl group of the carbon numbers 1-4, the alkoxy group of the carbon numbers 1-4, Express the aralkyl group which is not replaced [the phenyl group which is not replaced / substitution or /, substitution, or] or a halogen atom, and d and e mean the integer of 1-10 independently, respectively, and f and g, The integer of 0, 1, or 2 is meant independently, respectively, h and i mean 0 or 1 independently, respectively, and V has the above mentioned thing and the meaning.

[0043]Hereafter, the example of the above-mentioned hole transportability polyester shown by general formula (II) and (III) is shown. This invention is not necessarily limited to these examples. In a table, the number of the column of A of the sequence of a monomer is equivalent to the structure number which is an example of the structure shown by said general formula (I-1) and (I-2). That whose column of Z is "-" shows the example of the hole transportability polyester shown by general formula (II), and shows the example of the hole transportability polyester shown by general formula (III) except it. In an example, R and B which show the end group in general formula (II) and (III), or B' is combinable suitably according to the above, although not shown. Hereafter, the example which attached each number, for example, the example which attached the number of 15, is called illustration compound (15).


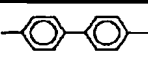



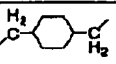
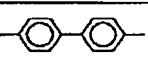






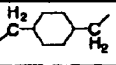
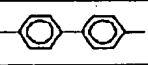
[0044]

[Table 12]

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(1)	1	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	81
(2)	2	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	85
(3)	4	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	93
(4)	4	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	89
(5)	4	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		2	87
(6)	4	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		2	58
(7)	4	—		—	1	96
(8)	4	—		$-(\text{CH}_2)_4-$	1	47
(9)	4	—		—	1	32
(10)	6	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	47
(11)	6	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	2	30
(12)	7	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	57
(13)	7	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	2	29
(14)	7	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	40
(15)	8	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	$-(\text{CH}_2)_4-$	2	39
(16)	9	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	33
(17)	10	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	42
(18)	16	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	44
(19)	16	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	35
(20)	16	—	$-(\text{CH}_2)_4-$		1	33
(21)	16	—		—	1	30
(22)	16	—		—	1	25






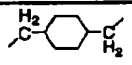
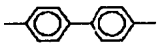

[0045]

[Table 13]

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(23)	16	—			1	32
(24)	18	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	39
(25)	19	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	34
(26)	20	—		—	1	27
(27)	21	—		—	1	25
(28)	22	—			1	24
(29)	23	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	34
(30)	23	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	29
(31)	23	—		—	1	27
(32)	23	—		—	1	23
(33)	25	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	45
(34)	26	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	34
(35)	32	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	38
(36)	33	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	27
(37)	33	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	30
(38)	33	—		—	1	28
(39)	33	—		—	1	27
(40)	33	—			1	24
(41)	34	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	33

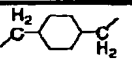
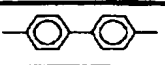






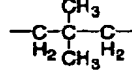
[0046]

[Table 14]

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(42)	35	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	29
(43)	36	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	27
(44)	37	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	25
(45)	38	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	22
(46)	39	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	21
(47)	40	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	19
(48)	41	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	52
(49)	42	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	47
(50)	43	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	51
(51)	43	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	42
(52)	43	—		—	1	39
(53)	43	—		—	1	32
(54)	44	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	29
(55)	45	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	35
(56)	46	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	45
(57)	47	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	34
(58)	48	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	31
(59)	52	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	43
(60)	52	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	33
(61)	52	—		—	1	30
(62)	53	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	42
(63)	54	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	39
(64)	55	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	37
(65)	55	—			1	36
(66)	56	—		—	1	35

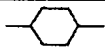

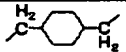

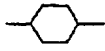


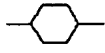

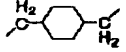
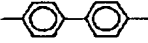

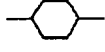

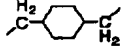

[0047]

[Table 15]

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(67)	56	—			1	33
(68)	57	—		—	1	36
(69)	58	—	—CH ₂ CH ₂ —	—		39
(70)	71	—	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	42
(71)	1/6	1/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	62
(72)	6/20	1/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	38
(73)	6/20	1/1		—	1	31
(74)	6/20	1/1	—CH ₂ CH ₂ —		1	35
(75)	6/29	1/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	50
(76)	6/29	1/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	2	37
(77)	6/31	1/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	43
(78)	6/8/29	1/1/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	40
(79)	8/29	1/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	36
(80)	8/29	1/1	—CH ₂ CH ₂ —		1	30
(81)	8/29	1/2	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	35
(82)	8/29	2/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	42
(83)	72	—	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	60
(84)	73	—	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	54
(85)	75	—	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	65
(86)	75	—	—CH ₂ CH ₂ —		1	62
(87)	75	—	—CH ₂ CH ₂ —		1	55
(88)	75	—		—	1	30





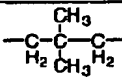


[0048]

[Table 16]

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(89)	75	—		—	1	63
(90)	75	—		$-(CH_2)_4-$	1	57
(91)	75	—		—	1	32
(92)	76	—	$-CH_2CH_2-$	—	1	70
(93)	76	—	$-CH_2CH_2-$		2	55
(94)	77	—	$-CH_2CH_2-$	$-(CH_2)_4-$	1	40
(95)	77	—		—	1	51
(96)	78	—		—	1	46
(97)	79	—	$-CH_2CH_2-$	—	1	43
(98)	79	—	$-CH_2CH_2-$		1	34
(99)	80	—		—	1	32
(100)	81	—		—	1	36
(101)	81	—				32
(102)	82	—	$-CH_2CH_2-$	—	1	45
(103)	82	—	$-(CH_2)_4-$		1	35
(104)	82	—		—	1	37
(105)	82	—		—	1	34
(106)	82	—			1	29








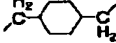




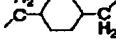
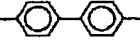


[0049]

[Table 17]

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(107)	83	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	55
(108)	85	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	38
(109)	86	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	30
(110)	86	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	26
(111)	86	—		—	1	27
(112)	86	—		—	1	25
(113)	87	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	36
(114)	87	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	30
(115)	89	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	34
(116)	93	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	29
(117)	93	—		—	1	26
(118)	94	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	29
(119)	95	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	32
(120)	96	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	29
(121)	97	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	28
(122)	98	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	33
(123)	99	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	30
(124)	99	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	27
(125)	99	—		—	1	28
(126)	101	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	48
(127)	102	—	$-(\text{CH}_2)_4-$	$-(\text{CH}_2)_4-$	1	53
(128)	103	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	59
(129)	105	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	42


[0050]

[Table 18]

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(130)	105	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	34
(131)	105	—		—	1	36
(132)	106	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	40
(133)	107	—		—	1	34
(134)	108	—		—	1	30
(135)	109	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	35
(136)	109	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	31
(137)	109	—		—	1	33
(138)	109	—		—	1	30
(139)	110	—			1	39
(140)	111	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	38
(141)	111	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	31
(142)	111	—		—	1	34
(143)	111	—		—	1	29
(144)	112	—			1	26
(145)	75/80	1/1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	30
(146)	75/80	1/1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	2	27
(147)	75/80	1/1			1	26
(148)	75/93	1/1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	27

[0051]

[Table 19]

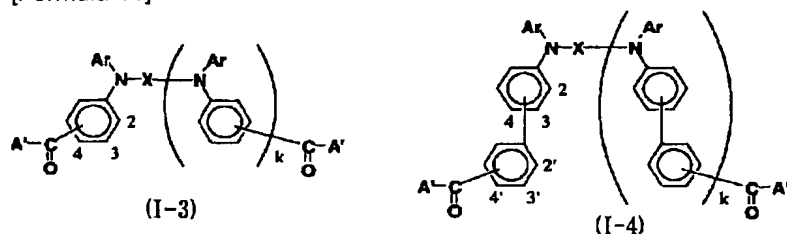
化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(149)	75/93	1/1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	2	24
(150)	75/77/93	1/1/1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	28
(151)	77/93	1/1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	26
(152)	77/93	1/2	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	29
(153)	77/93	2/1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	34

[0052]As for weight-average-molecular-weight M_w of the hole transportability polyester shown by general formula (II) and (III), it is preferred that it is in the range of 10,000-300,000.

[0053]The hole transportability polyester shown by general formula (II) and (III), It is compoundable by polymerizing the hole transportability monomer shown by the following structural formula (I-3) and (I-4) by the publicly known method indicated to the 28th volume (Maruzen, 1992) of the 4th edition experimental science lecture etc., for example. A structural formula (I-3) and (I-4) inside, Ar, X, T, and k, It is the same as that of said general formula (I-1) and Ar in (I-2), X, T, and k, A' expresses hydroxyl group, halogen atom, or basis-O-R₁₃, and R₁₃ expresses the aryl group which is not replaced [an alkyl group, substitution, or] or an aralkyl group.

[0054]

[Formula 11]



[0055]The hole transportability polyester which is general formula (II) and is shown is compoundable as follows, for example. When A' is a hydroxyl group, equivalent mixing of the hole transportability monomer shown by the above-mentioned structural formula (I-3) and (I-4) is mostly carried out with the dihydric alcohol shown by HO-(Y-O) m-H, and it polymerizes using an acid catalyst. As an acid catalyst, sulfuric acid, toluenesulfonic acid, trifluoroacetic acid, etc. can use what is used for the usual esterification reaction, and are respectively used [10,000-] preferably 10 weight section to hole transportability monomer 1 weight section in the range of 1/[1/1,000 -] 50 weight section. In order to remove the water generated during a polymerization, it is preferred to use water and the solvent in which azeotropy is possible, toluene, chlorobenzene, 1-chloronaphthalene, etc. are effective, and it is preferably used in the range of two to 50 weight section one to 100 weight section to hole transportability monomer 1 weight section. Although reaction temperature can be set up arbitrarily, in order to remove the water generated during a polymerization, it is preferred to make it react in the boiling point of a solvent.

[0056]When a solvent is not used, it is made to dissolve in a solvent which can dissolve after ending reaction. When a solvent is used, after dropping a reaction solution as it is into alcohols, such as methanol and ethanol, and a poor solvent which polymer, such as acetone, cannot dissolve easily, depositing hole transportability polyester and separating electron hole transportability polyester, it washes enough and is made to dry by water or an organic solvent. As long as it is required, it may be made to dissolve in a suitable organic solvent, and it may be dropped into a poor solvent, and reprecipitation processing which deposits hole transportability polyester may be repeated. It is preferred to carry out with a mechanical stirrer etc. in the case of reprecipitation processing, agitating efficiently. In the case of reprecipitation processing, a solvent in which hole transportability polyester is dissolved is preferably used in the range of two to 50 weight section one to 100 weight section to hole transportability polyester 1 weight section. A poor solvent is preferably used in the range of ten to 500 weight section one to 1,000 weight section to hole transportability polyester 1 weight section.

[0057]When A' is halogen, equivalent mixing of the hole transportability monomer shown by the above-mentioned structural formula (I-3) and (I-4) is mostly carried out with the dihydric alcohol shown by HO-(Y-O) m-H, and it polymerizes using organic base nature catalysts, such as pyridine and triethylamine. 1-10 Eq of organic base nature catalysts are preferably used in 2-5 Eq to 1 Eq of hole transportability monomers. As a solvent, a methylene chloride, a tetrahydrofuran (THF), toluene, chlorobenzene, 1-chloronaphthalene, etc. are effective, and it is preferably used in the range of two to 50 weight section one to 100 weight section to hole transportability monomer 1 weight section. Reaction temperature can be set up arbitrarily. After a polymerization carries out reprecipitation processing as mentioned above, and is refined.

[0058]Interfacial polymerization can also be used for a case of dihydric alcohol with high acidity [dihydric alcohol / which is shown by HO-(Y-O) m-H] of a bisphenol etc. That is, after adding dihydric alcohol to water, adding a base of the equivalent and making it dissolve, it can polymerize by adding a hole transportability monomer solution of the equivalent shown by dihydric alcohol, the above-mentioned structural formula (I-3), and (I-4), agitating violently. Under the present circumstances, water is preferably used in the range of ten to 500 weight section one to 1,000 weight section to dihydric alcohol 1 weight section. As a solvent in which a hole transportability monomer is dissolved, a methylene chloride, a dichloroethane, trichloroethane, toluene, chlorobenzene, 1-chloronaphthalene, etc. are effective. In order to be able to set up reaction temperature arbitrarily and to promote a reaction, it is effective to use phase transfer catalysis of ammonium salt, sulfonium salt, etc. Phase transfer catalysis is preferably used in the range of 0.2 to 5 weight section 0.1 to 10 weight section to hole transportability monomer 1 weight section.

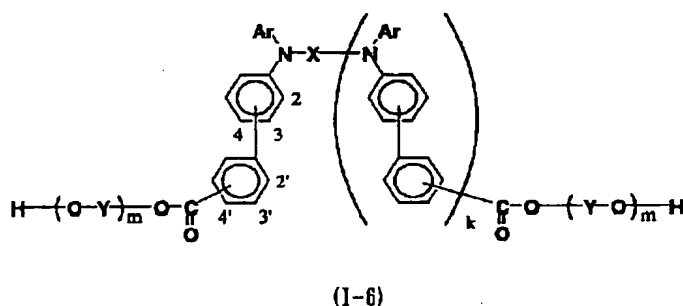
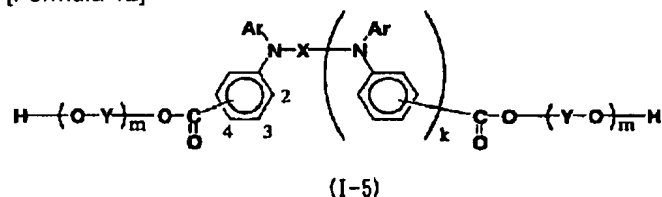
[0059]When A' is -O-R₁₃, to a hole transportability monomer shown by the above-mentioned structural formula (I-3) and (I-4). The dihydric alcohol shown by HO-(Y-O) m-H is added superfluously, an oxide of acetate, such as inorganic acid, such as sulfuric acid and phosphoric acid, a titanium alkoxide, calcium, and cobalt, or carbonate, zinc, or lead is used for a catalyst, and is heated, and it can compound by an ester interchange. 2-100 Eq of dihydric alcohol is preferably used in 3-

50 Eq to 1 Eq of hole transportability monomers. 1/10 of catalysts are preferably used 10,000 to 1 weight section to hole transportability monomer 1 weight section in the range of 1/1,000 - 1 / amount part of duplexs. A reaction is performed with reaction temperature of 200-300 **, and after ester interchange ending from basis-O-R₁₃ to basis-O-(Y-O) m-H, in order to promote a polymerization by desorption of HO-(Y-O) m-H, it is preferred to make it react under decompression. It can also be made to react using retarder thinner, such as 1-chloronaphthalene in which HO-(Y-O) m-H and azeotropy are possible, removing HO-(Y-O) m-H with azeotropy under ordinary pressure.

[0060] On the other hand, hole transportability polyester shown by general formula (III) is compoundable as follows, for example. In each case in composition of hole transportability polyester shown by the above-mentioned general formula (II), After generating a compound shown by adding dihydric alcohol superfluously and making it react by the following structural formula (I-5) and (I-6), using this as a hole transportability monomer by the same method as the above. What is necessary is just to be able to make it able to react to divalent carboxylic acid or a divalent-carboxylic-acid halogenide, and hole transportability polyester can be obtained by it. Ar, X, Y, T, k, and m are the same as that of said general formula (I-1) and Ar in (I-2), X, Y, T, k, and m into a structural formula (I-5) (I-6).

[0061]

[Formula 12]



[0062] Next, a full account is given about the lamination of the organic EL device of this invention. At least one side comprises an electrode of a transparent or translucent couple, and one or more organic compound layers containing the luminous layer pinched by inter-electrode [these], and the organic EL device of this invention contains said hole transportability polyester in at least one layer of this organic compound layer. In the organic EL device of this invention, when the number of organic compound layers is one, an organic compound layer means a luminous layer with carrier transport ability, and this luminous layer contains said hole transportability polyester. When an organic compound layer is plurality (when it is a functional discrete type), At least one of them is a luminous layer, other organic compound layers mean what consists of a carrier transport layer, i.e., a hole transporting bed, an electron transport layer, or a hole transporting bed and an electron transport layer, and these at least one layer contains said hole transportability polyester. An organic compound layer specifically comprises a hole transporting bed and a luminous layer at least, for example, That in which this hole transporting bed contains said hole transportability polyester, the thing in which it comes to comprise an organic compound layer only a luminous layer, and this luminous layer contains said hole transportability polyester, etc. are mentioned.

[0063] Although hereafter explained more to details, referring to drawings, it is not necessarily limited to these. Drawing 1 - drawing 4 are the typical sectional views for explaining lamination of an organic EL device of this invention, in the case of drawing 1, drawing 2, and drawing 4, it is an example in case an organic compound layer is plurality, and, in the case of drawing 3, an example in case the number of organic compound layers is one is shown. In drawing 1 - drawing 4, what has the same function attaches and explains the same numerals.

[0064] An organic EL device shown in drawing 1 laminates the luminous layer 6, the electron transport layer 5, and the back plate 7 which have the transparent electrode 2 and carrier transport ability on the transparent insulator board 1 one

by one. An organic EL device shown in drawing 2 laminates the transparent electrode 2, the hole transporting bed 3, the luminous layer 4, the electron transport layer 5, and the back plate 7 one by one on the transparent insulator board 1. An organic EL device shown in drawing 3 laminates the luminous layer 6 and the back plate 7 which have the transparent electrode 2 and carrier transport ability on the transparent insulator board 1 one by one. An organic EL device shown in drawing 4 laminates the luminous layer 6 and the back plate 7 which have the transparent electrode 2, the hole transporting bed 3, and carrier transport ability on the transparent insulator board 1 one by one. Hereafter, each is explained in detail. In the case of lamination of an organic EL device shown in drawing 2 and drawing 4, in the case of lamination of an organic EL device which acts as the hole transporting bed 3, and is shown in drawing 1 and drawing 3, an organic compound layer containing said hole transportability polyester acts as the luminous layer 5 with carrier transport ability. Hereafter, each is explained in detail.

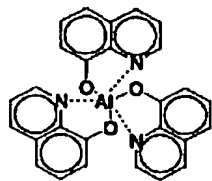
[0065]In the case of lamination of an organic EL device shown in drawing 1 - 4, a transparent thing of the transparent insulator board 1 is preferred in order to take out luminescence, and glass, a plastic film, etc. are used. The transparent electrode 2 is transparent in order to take out luminescence like a transparent insulator board, And in order to pour in a hole, a big thing of a work function is preferred, and oxide films, such as tin-oxide indium (ITO), tin oxide (NESA), indium oxide, and a zinc oxide, and vacuum evaporation or gold by which weld slag was carried out, platinum, palladium, etc. are used.

[0066]In the case of lamination of an organic EL device shown in drawing 2 and drawing 4, the hole transporting bed 3 may be formed with a hole transportability polyester independent, but. In order to adjust Hall mobility, mixture dispersion of the hole carrying materials other than hole transportability polyester is carried out in 1 % of the weight thru/or 50% of the weight of the range, and it may be formed. As such a hole carrying material, although a tetra phenylenediamine derivative, a triphenylamine derivative, carbazole derivation, a stilbene derivative, an aryl hydrazone derivative, a porphyrin system compound, etc. are mentioned, Since compatibility with hole transportability polyester is good, a tetra phenylenediamine derivative is preferred. Mixing with other general-purpose resin may be sufficient.

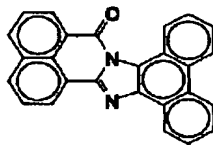
[0067]In the case of lamination of an organic EL device shown in drawing 2, a compound in which a high fluorescence quantum yield is shown according to a solid state is used for the luminous layer 4 as a luminescent material. When a luminescent material is an organic low molecule, it is conditions for good thin film forming to be possible by applying and drying a solution or dispersion liquid containing a vacuum deposition method, or a low molecule and binding resin. It is conditions for good thin film forming to be possible by applying and drying a solution or dispersion liquid containing itself in the case of polymers. In an organic low molecule, suitably A chelate type organometallic complex, polynuclear, or a fused aromatic ring compound, A perylene derivative, a coumarin derivative, a styryl arylene derivative, a silole derivative, When an oxazole derivative, an oxa thiazole derivative, an oxadiazole derivative, etc. are polymers, a poly para-phenylene derivative, a poly para-phenylene vinylene derivative, a poly thiophene derivative, a polyacethylene derivative, etc. are mentioned. Although following compound (IV-1) - (IV-15) was used as a suitable example, it was not limited to these. n and x show one or more integers among structural-formula (IV-13) - (IV-15).

[0068]

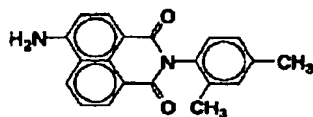
[Formula 13]



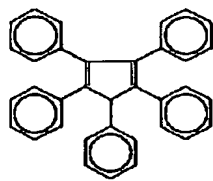
(IV-1)



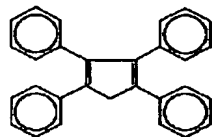
(IV-2)



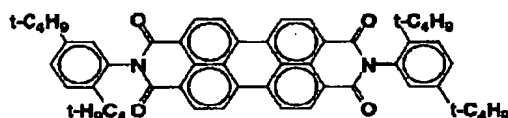
(IV-3)



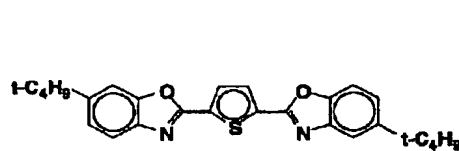
(IV-4)



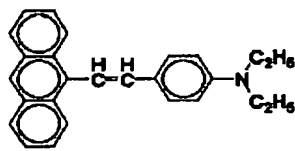
(IV-5)



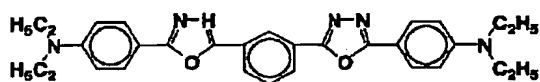
(IV-6)



(IV-7)



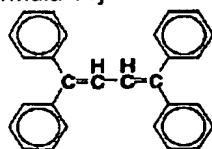
(IV-8)



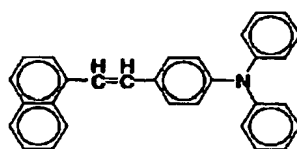
(IV-9)

[0069]

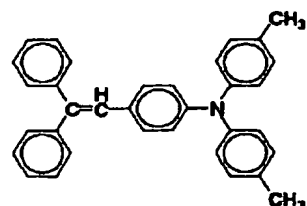
[Formula 14]



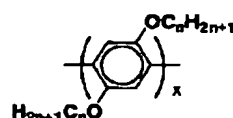
(IV-10)



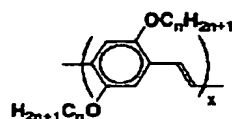
(IV-11)



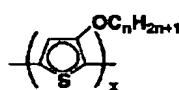
(IV-12)



(IV-13)



(IV-14)



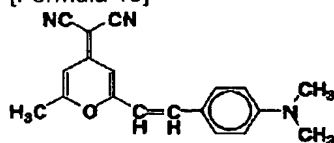
(IV-15)

[0070]A pigment compound which is different from a luminescent material as a guest material in the above-mentioned

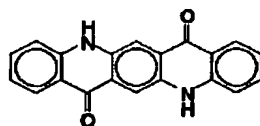
luminescent material for the purpose of the durability enhancement of an organic EL device or improvement in luminous efficiency may be doped. When forming a luminous layer with vacuum deposition, it dopes by vapor codeposition, and when forming a luminous layer by applying and drying a solution or dispersion liquid, it dopes by mixing in a solution or dispersion liquid. If doping of the pigment compound in a luminous layer carries out comparatively, they are 0.01 % of the weight - about 10 % of the weight preferably 0.001 % of the weight - about 40% of the weight. The organic compound in which compatibility with a luminescent material does not bar the good thin film forming of a luminous layer well as a pigment compound used for such doping is used, and a DCM derivative, a quinacridone derivative, a rubrene derivative, a porphyrin system compound, etc. are mentioned suitably. Although following compound (V-1) - (V-4) was used as a suitable example, it was not limited to these.

[0071]

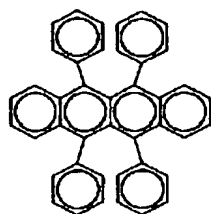
[Formula 15]



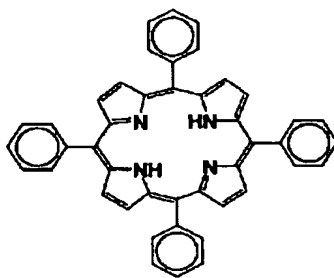
(V-1)



(V-2)



(V-3)

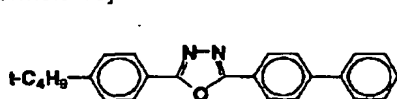


(V-4)

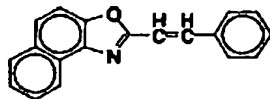
[0072]In the case of the lamination of the organic EL device shown in drawing 1 and drawing 2, the electron transport layer 5 is formed with electron-transport-property material. When a luminescent material (luminous layer), for example, uses what does not show clear electron transport property, this electron transport layer 5, The balance of the hole and electron which are poured into an organic EL device is adjusted, or it is inserted between the luminous layer 6 and the back plate 7 with the luminous layer 4 or carrier transport ability in order to aim at durability enhancement of an organic EL device, or improvement in luminous efficiency. As an electron transport material used for such an electron transport layer 5, The organic compound in which good thin film forming is possible is used by a vacuum deposition method, and an oxadiazole derivative, a nitration fluorenone derivative, a diphenoquinone derivative, a thiopyrandioxide derivative, a full ORENIRIDEN methane derivative, etc. are mentioned suitably. Although following compound (VI-1) - (VI-3) was used as a suitable example, it was not limited to these.

[0073]

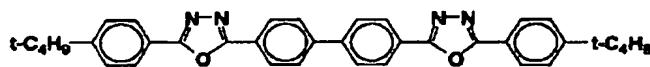
[Formula 16]



(VI-1)



(VI-2)



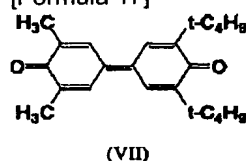
(VI-3)

[0074]In the case of the lamination of the organic EL device shown in drawing 1 and drawing 3, the luminous layer 6 with carrier transport ability is an organic compound layer which distributed the luminescent material 50 or less % of the weight in the above-mentioned hole transportability polyester at least, Although said compound (IV-1) thru/or a compound (IV-12) are suitably used as a luminescent material, in order to adjust the balance of the hole and electron which are poured into

an organic EL device, an electron transport material may be distributed 10 % of the weight - 50% of the weight. Although the organic compound in which the above-mentioned hole transportability polyester and a strong electron interaction are not shown as such an electron transport material is used and following compound (VII) is used suitably, it is not limited to this. in order to adjust Hall mobility similarly – hole carrying materials other than hole transportability polyester – preferably, it may be made to distribute simultaneously and a proper quantity of tetra phenylenediamine derivatives may be used. A different pigment compound from a luminescent material may be doped. On the other hand, in the case of the lamination of the organic EL device shown in drawing 4, are the organic compound layer which the luminous layer 6 with carrier transport ability made distribute a luminescent material 50 or less % of the weight in an electron transport material, and said compound (IV-1) thru/or a compound (IV-12) are suitably used as a luminescent material, but. In order to adjust the balance of the hole and electron which are poured into an organic EL device, a hole carrying material may be distributed 10 % of the weight - 50% of the weight.

[0075]

[Formula 17]



[0076] Vacuum deposition is possible, in the case of the lamination of the organic EL device shown in drawing 1 - drawing 4, in order to perform electron injection to the back plate 7, the small metal of a work function is used for it, but they are magnesium, aluminum, silver, indium, and these alloys especially preferably. On the back plate 7, in order to prevent degradation by the moisture and oxygen of an element further, a protective layer may be provided. As a material of a concrete protective layer, resin, such as metallic oxides, such as metal, such as In, Sn, Pb, Au, Cu, Ag, and aluminum, MgO, SiO₂, and TiO₂, polyethylene resin, polyurea resin, and polyimide resin, is mentioned. A vacuum deposition method, sputtering process, the plasma polymerizing method, a CVD method, and the coating method are applicable to formation of a protective layer.

[0077] An organic EL device shown in these drawing 1 - drawing 4 forms the luminous layer 6 which has the hole transporting bed 3 or carrier transport ability according to lamination of each organic EL device on the transparent electrode 2 first. The luminous layer 6 with the hole transporting bed 3 and carrier transport ability is formed by using the spin coating method, a dip method, etc. and producing a film on said transparent electrode 2, using coating liquid dissolved, or distributed and obtained in a vacuum deposition method or an organic solvent in each above-mentioned material.

[0078] Next, the luminous layer 6 which has the hole transporting bed 3, the electron transport layer 5, the luminous layer 4, or carrier transport ability according to lamination of each organic EL device, It is formed by producing each above-mentioned material using the spin coating method, a dip method, etc. using coating liquid dissolved, or distributed and obtained in a vacuum deposition method or an organic solvent.

[0079] As for especially thickness of the hole transporting bed 3 formed, the luminous layer 4, and the electron transport layer 5, it is respectively preferred that it is the range of 0.03-0.08 micrometer 0.1 micrometer or less. As for thickness of the luminous layer 6 with carrier transport ability, about 0.03-0.2 micrometer is preferred. A dispersion state of each above-mentioned materials (said charge transport nature polyurethane, a luminescent material, etc.) may also be a molecular dispersion state or a particle dispersion state. In order to change into a molecular dispersion state in the case of the producing-film method using coating liquid, the dispersing solvent needs to use a common solvent of each above-mentioned material, and in order to consider it as a particle dispersion state, it is necessary to choose a dispersing solvent in consideration of the dispersibility of each above-mentioned material, and solubility. In order to distribute in the shape of a particle, a ball mill, a sand mill, a paint shaker, attritor, a ball mill, a homogenizer, an supersonic method, etc. can be used.

[0080] And an element is completed by finally forming the back plate 7 with a vacuum deposition method on the luminous layer 6 with the electron transport layer 5 or carrier transport ability.

[0081] An organic EL device of this invention can be made to emit light by being 4-20V and impressing the current density 1 - direct current voltage of 200 mA/cm² to inter-electrode [of a couple], for example.

[0082]

[Example] Hereafter, an example is given and this invention is explained still more concretely. However, these each example does not restrict this invention.

[0083]The hole transportability polyester used for the example was obtained as follows, for example.

- The synthetic example 1 [Illustration compound (12)] -2.0 g of N,N'-diphenyl-N,N'-screw [4-methoxy carbonylphenyl]-[1,1'-biphenyl]-4,4'-diamine, 8.0g of ethylene glycol and 0.1 g of tetrabutoxytitanium were put into a 50-ml flask, and heating stirring was carried out at 200 °C under the nitrogen air current for 3 hours. After checking that N,N'-diphenyl-N,N'-screw [4-methoxy carbonylphenyl]-[1,1'-biphenyl]-4,4'-diamine had been consumed, it heated at 230 °C, having decompressed to 0.5mmHg and distilling off ethylene glycol, and the reaction was continued for 3 hours. Then, it cooled to the room temperature, and it dissolved in 50 ml of toluene, the insoluble matter was filtered, the filtrate was dropped at the inside which has agitated 250 ml of methanol, and polymer was deposited. Filter the obtained polymer, after methanol fully washes, it is made to dry, and it is 1.9 g of hole transportability polyester. [The illustration compound (12)] was obtained. The molecular weight was measured in GPC, it was $M_w=3.42 \times 10^4$ (styrene conversion), and p calculated from the molecular weight of the monomer was about 57.

[0084]- The synthetic example 2 [Illustration compound (102)] -2.0 g of N,N'-bis(alpha-naphthyl)-N,N'-screw [4-methoxy carbonylphenyl]-[1,1'-biphenyl]-4,4'-diamine, 8.0g of ethylene glycol and 0.1 g of tetrabutoxytitanium were put into a 50-ml flask, and heating stirring was carried out at 200 °C under the nitrogen air current for 3 hours. After checking that N,N'-bis(alpha-naphthyl)-N,N'-screw [4-methoxy carbonylphenyl]-[1,1'-biphenyl]-4,4'-diamine has been consumed, It heated at 230 °C, having decompressed to 0.5mmHg and distilling off ethylene glycol, and the reaction was continued for 3 hours. Then, it cooled to the room temperature, and it dissolved in 50 ml of toluene, the insoluble matter was filtered, the filtrate was dropped at the inside which has agitated 250 ml of methanol, and polymer was deposited. Filter the obtained polymer, after methanol fully washes, it is made to dry, and it is 1.2 g of hole transportability polyester. [The illustration compound (102)] was obtained. The molecular weight was measured in GPC, it was $M_w=3.20 \times 10^4$ (styrene conversion), and p calculated from the molecular weight of the monomer was about 45.

[0085]- The synthetic example 3 [Illustration compound (109)] -2.0 g of N,N'-bis(terphenyl)-N,N'-screw [4-methoxy carbonylphenyl]-[1,1'-biphenyl]-4,4'-diamine, 8.0g of ethylene glycol and 0.1 g of tetrabutoxytitanium were put into a 50-ml flask, and heating stirring was carried out at 200 °C under the nitrogen air current for 3 hours. After checking that N,N'-bis(4-methoxy-2-methylphenyl)-N,N'-screw [4-methoxy carbonylphenyl]-[1,1'-biphenyl]-4,4'-diamine has been consumed, It heated at 230 °C, having decompressed to 0.5mmHg and distilling off ethylene glycol, and the reaction was continued for 3 hours. Then, it cooled to the room temperature, and it dissolved in 50 ml of toluene, the insoluble matter was filtered, the filtrate was dropped at the inside which has agitated 250 ml of methanol, and polymer was deposited. Filter the obtained polymer, after methanol fully washes, it is made to dry, and it is 1.1 g of hole transportability polyester. [The illustration compound (109)] was obtained. The molecular weight was measured in GPC, it was $M_w=2.68 \times 10^4$ (styrene conversion), and p calculated from the molecular weight of the monomer was about 30.

[0086](Example 1) Hole transportability polyester [Illustration compound (12)] The 5-% of the weight dichloroethane solution of ($M_w=1.23 \times 10^5$) was prepared, and it filtered with a 0.1-micrometer polytetrafluoroethylene (PTFE) filter. Using this solution, on the glass substrate which formed the stick-shape ITO electrode of 2-mm width by etching, it applied with the dip method and the hole transporting bed of about 0.1 micrometer of thickness was formed. After making it dry enough, said illustration compound (IV-1) which carried out sublimation refining as a luminescent material was put into the tungsten boat, it vapor-deposited with the vacuum deposition method, and the luminous layer of 0.05 micrometer of thickness was formed on the hole transporting bed. The degree of vacuum at this time was 10^{-5} Torr, and boat temperature was 300 °C. Then, Mg-Ag alloy was vapor-deposited by vapor codeposition, and the back plate of 2-mm width and 0.15-micrometer thickness was formed so that an ITO electrode might be intersected. The usable area of the formed organic EL device was 0.04-cm².

[0087](Example 2) Hole transportability polyester [Illustration compound (12)] ($M_w=3.42 \times 10^4$) Said illustration compound (IV-1) 1 weight section was mixed as one weight section and a luminescent material, the dichloroethane solution was prepared 10% of the weight, and it filtered with a 0.1-micrometer PTFE filter. The luminous layer which applies with a dip method and has the carrier transport ability of 0.15 micrometer of thickness on the glass substrate which formed the stick-shape ITO electrode of 2-mm width by etching was formed using this solution. After making it dry enough, Mg-Ag alloy was vapor-deposited by vapor codeposition, and the back plate of 2-mm width and 0.15-micrometer thickness was formed so that an ITO electrode might be intersected. The usable area of the formed organic EL device was 0.04-cm².

[0088](Example 3) Hole transportability polyester [Illustration compound (12)] Said illustration compound (VI-1) was mixed for said illustration compound (IV-1) as the amount part of duplexes, and a luminescent material, one weight section was mixed for ($M_w=3.42 \times 10^4$) as 0.1 weight sections and an electron transport material, the dichloroethane solution was prepared 10% of the weight, and it filtered with a 0.1-micrometer PTFE filter. The luminous layer which applies with a dip

method and has the carrier transport ability of 0.15 micrometer of thickness on the glass substrate which formed the stick-shape ITO electrode of 2-mm width by etching was formed using this solution. After making it dry enough, Mg-Ag alloy was vapor-deposited by vapor codeposition, and the back plate of 2-mm width and 0.15-micrometer thickness was formed so that an ITO electrode might be intersected. The usable area of the formed organic EL device was 0.04-cm².

[0089](Example 4) Hole transportability polyester Instead of [an illustration compound (12)], it is hole transportability polyester. [Illustration compound (102)] The organic EL device was produced like Example 1 except having used (Mw=3.20x10⁴).

[0090](Example 5) Hole transportability polyester Instead of [an illustration compound (12)], it is hole transportability polyester. [Illustration compound (102)] Except having used (Mw=3.20x10⁴), Example 2 and ** were used and the organic EL device was produced.

[0091](Example 6) Hole transportability polyester Instead of [an illustration compound (12)], it is hole transportability polyester. [Illustration compound (102)] The organic EL device was produced like Example 3 except having used (Mw=2.68x10⁴).

[0092](Example 7) Hole transportability polyester Instead of [an illustration compound (12)], it is hole transportability polyester. [Illustration compound (109)] The organic EL device was produced like Example 1 except having used (Mw=3.20x10⁴).

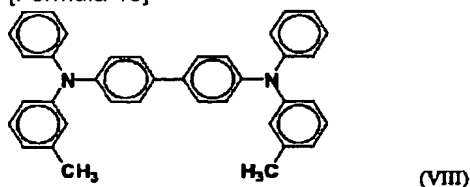
[0093](Example 8) Hole transportability polyester Instead of [an illustration compound (12)], it is hole transportability polyester. [Illustration compound (109)] Except having used (Mw=3.20x10⁴), Example 2 and ** were used and the organic EL device was produced.

[0094](Example 9) Hole transportability polyester Instead of [an illustration compound (12)], it is hole transportability polyester. [Illustration compound (109)] The organic EL device was produced like Example 3 except having used (Mw=2.68x10⁴).

[0095](Comparative example 1) Are following structural-formula (VIII) and the hole carrying material shown One weight section, Said illustration compound (IV-1) was mixed as a luminescent material, one weight section of polymethylmethacrylate (PMMA) was mixed as one weight section and binding resin, the dichloroethane solution was prepared 10% of the weight, and it filtered with a 0.1-micrometer PTFE filter. The luminous layer which applies with a dip method and has the carrier transport ability of 0.15 micrometer of thickness on the glass substrate which formed the stick-shape ITO electrode of 2-mm width by etching was formed using this solution. After making it dry enough, Mg-Ag alloy was vapor-deposited by vapor codeposition, and the back plate of 2-mm width and 0.15-micrometer thickness was formed so that an ITO electrode might be intersected. The usable area of the formed organic EL device was 0.04-cm².

[0096]

[Formula 18]



[0097](Comparative example 2) A polyvinyl carbazole (PVK) as hole transportability polyester The amount part of duplexs, Said illustration compound (IV-1) was mixed as a luminescent material, one weight section of said illustration compound (VI-1) was mixed as 0.1 weight sections and an electron transport material, the dichloroethane solution was prepared 10% of the weight, and it filtered with a 0.1-micrometer PTFE filter. Using this solution, on the glass substrate which formed the stick-shape ITO electrode of 2-mm width by etching, it applied with the dip method and the hole transporting bed of 0.15 micrometer of thickness was formed. After making it dry enough, Mg-Ag alloy was vapor-deposited by vapor codeposition, and the back plate of 2-mm width and 0.15-micrometer thickness was formed so that an ITO electrode might be intersected. The usable area of the formed organic EL device was 0.04-cm².

(Evaluation) The ITO electrode side is added for the organic EL device produced as mentioned above in a vacuum (133.3x10⁻³Pa (10⁻³Torr)), Direct current voltage was impressed by having considered the Mg-Ag back plate as minus, it measured about luminescence, and the maximum luminance at this time and the luminescent color were evaluated. Those results are shown in Table 20. The luminescence life of the organic EL device was measured in dry nitrogen. Evaluation of the luminescence life set up the current value so that initial luminance might serve as 50 cd/m², and it made

time until luminosity is halved from an initial value by a constant current drive the element life (hour). The driving current density at this time is shown in Table 20 with an element life.

[0098]

[Table 20]

	最高輝度 (cd/m ²)	発光色	駆動電流密度 (mA/cm ²)	素子寿命 (hour)
実施例 1	740	緑	7.0	30
実施例 2	500	緑	6.8	32
実施例 3	520	赤	6.9	28
実施例 4	800	緑	6.6	31
実施例 5	620	緑	6.5	31
実施例 6	580	赤	7.2	26
比較例 1	480	緑	9.5	18
比較例 2	450	赤	9.8	15

[0099]The hole transportability polyester which consists of a repeated structure unit which contains as a substructure at least one sort chosen from the structure shown by the above-mentioned general formula (I-1) and (I-2) from the example and the comparative example from the result of Table 20, It has the suitable ionization potential and Hall mobility for an organic EL device, The organic EL device of this invention which it turned out that it is possible to form a good thin film using the spin coating method, a dip method, etc., and was formed using this, Since luminosity high enough is shown and thickness can be set up comparatively thickly, there are also few defects of a pinhole etc., they are easy also for large-area-izing, and also understand having the endurance which moreover improved.

[0100]

[Effect of the Invention]as mentioned above – according to this invention, have sufficient luminosity, and excel in stability and endurance, and large-area-izing is possible – manufacture – an easy organic EL device can be provided.

[Translation done.]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2003-36979

(P2003-36979A)

(43) 公開日 平成15年2月7日(2003.2.7)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード* (参考)
H 0 5 B 33/22		H 0 5 B 33/22	D 3 K 0 0 7
C 0 8 G 63/685		C 0 8 G 63/685	4 J 0 0 2
C 0 8 K 5/00		C 0 8 K 5/00	4 J 0 2 9
C 0 8 L 67/00		C 0 8 L 67/00	
C 0 9 K 11/06	6 8 0	C 0 9 K 11/06	6 8 0
審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 31 頁) 最終頁に続く			

(21) 出願番号 特願2001-221292(P2001-221292)

(22) 出願日 平成13年7月23日(2001.7.23)

(71) 出願人 000005496

富士ゼロックス株式会社

東京都港区赤坂二丁目17番22号

(72) 発明者 尾崎 忠義

神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士ゼロックス株式会社内

(72) 発明者 廣瀬 英一

神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士ゼロックス株式会社内

(74) 代理人 100079049

弁理士 中島 淳 (外3名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子

(57) 【要約】

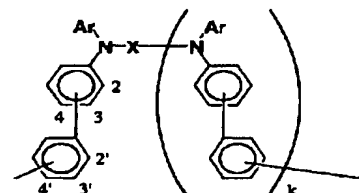
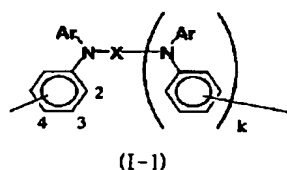
【課題】 十分な輝度を有し、安定性および耐久性に優れ、且つ大面積化可能であり製造容易な有機EL素子を提供すること。

【解決手段】 少なくとも一方が透明または半透明である一対の電極間に挟持された一つまたは複数の有機化合物層より構成される電界発光素子において、該有機化合物

層の少なくとも一層が、下記一般式 (I-1) および

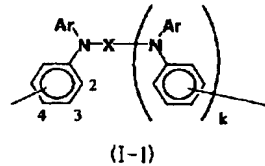
(I-2) で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰返し単位よりなるホール輸送性ポリエステルを1種以上含有することを特徴とする有機電界発光素子である。

【化1】



【特許請求の範囲】

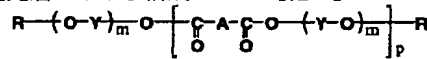
【請求項 1】 少なくとも一方が透明または半透明である一対の電極間に挟持された一つまたは複数の有機化合物層より構成される電界発光素子において、該有機化合物層の少なくとも一層が、下記一般式 (I-1) および



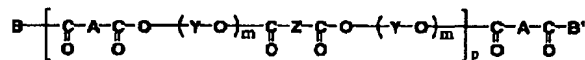
【一般式 (I-1) および (I-2) 中、Ar は、置換もしくは未置換の芳香環、置換もしくは未置換の芳香環数 3~10 の多核芳香環、または置換もしくは未置換の芳香環数 2~10 の縮合芳香環を表し、X は置換もしくは未置換の 2 価の芳香族基を表し、k は 0 または 1 を表す。】

【請求項 2】 前記有機化合物層が少なくともホール輸送層および発光層から構成され、該ホール輸送層が、前記一般式 (I-1) および (I-2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなるホール輸送性ポリエステルを 1 種以上含有してなることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 3】 前記有機化合物層が発光層のみから構成



20



(III)

【一般式 (I I) または (I I I) 中、A は上記一般式 (I-1) および (I-2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を表し、R は水素原子、アルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、または置換もしくは未置換のアラルキル基を表し、Y は 2 価アルコール残基を表し、Z は 2 価のカルボン酸残基を表し、B および B' は、それぞれ独立に基-O-(Y-O)m-R、または基-O-(Y-O)m-CO-Z-CO-O-R' (ここで、R、Y、Z は上記したと同じ意味を有し、R' はアルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、または置換もしくは未置換のアラルキル基を表し、m は 1~5 の整数を表す、p は 5~5,000 の整数を表す。) を表し、m は 1~5 の整数を表し、p は 5~5,000 の整数を表す。】

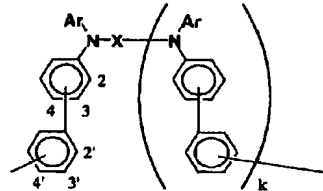
【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、有機電界発光素子

(I-2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなるホール輸送性ポリエステルを 1 種以上含有することを特徴とする有機電界発光素子。

【化 1】



され、該発光層が、前記一般式 (I-1) および (I-2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなるホール輸送性ポリエステルを 1 種以上を含有してなることを特徴とする請求項 1 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 4】 前記発光層が、電荷輸送性材料を含むことを特徴とする請求項 3 に記載の有機電界発光素子。

【請求項 5】 前記一般式 (I-1) および (I-2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰り返し単位よりなるホール輸送性ポリエステルが、下記一般式 (I I) または (I I I) で示されるホール輸送性ポリエステルであることを特徴とする請求項 1~4 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【化 2】

(以下、「有機 EL 素子」という) に関し、詳しくは、特定のホール輸送性ポリエステルを用いた有機電界発光素子に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 電界発光素子 (以下、「EL 素子」と記述する) は、自発光性の全固体素子であり、視認性が高く衝撃にも強いため、広く応用が期待されている。現在は無機蛍光体を用いたものが主流であるが、200V 以上の交流電圧が駆動に必要なため製造コストが高く、また輝度が不十分等の問題点を有している。

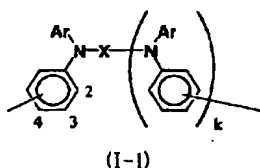
【0003】 一方、有機化合物を用いた EL 素子研究は、最初アントラセン等の単結晶を用いて始まったが、単結晶の場合、膜厚が 1mm 程度と厚く 100V 以上の駆動電圧が必要であった。そのため蒸着法による薄膜化が試みられている (Thin Solid Films, Vol. 94, 171 (1982))。しかしながら、

この方法で得られた薄膜は、駆動電圧が30Vと未だ高く、また、膜中における電子・ホールキャリアの密度が低く、キャリアの再結合によるフォトンの生成確率が低いため十分な輝度が得られなかった。

【0004】ところが近年、ホール輸送性有機低分子化合物と電子輸送能を持つ蛍光性有機低分子化合物の薄膜を真空蒸着法により順次積層した機能分離型のEL素子において、10V程度の低電圧で1000cd/m²以上の高輝度が得られるものが報告されており（Appl. Phys. Lett., Vol. 51, 913 (1987)）、以来、積層型のEL素子の研究・開発が活発に行われている。

【0005】しかしながら、このタイプのEL素子では、複数の蒸着工程において0.1μm以下の薄膜を形成していくためピンホールを生じ易く、十分な性能を得るためには厳しく管理された条件下で膜厚の制御を行うことが必要である。従って、生産性が低くかつ大面積化が難しいという問題がある。また、このEL素子は数mA/cm²という高い電流密度で駆動されるため、大量のジュール熱を発生する。このため、蒸着によってアモルファスガラス状態で製膜されたホール輸送性低分子化合物や蛍光性有機低分子化合物が次第に結晶化して最後には融解し、輝度の低下や絶縁破壊が生じるという現象が多く見られ、その結果素子の寿命が低下するという問題も有していた。

【0006】そこで、EL素子の熱安定性に関する問題の解決のために、ホール輸送材料として安定なアモルファスガラス状態が得られるスターバーストアミンを用いたり（第40回応用物理学関係連合講演会予稿集30a-SZK-14 (1993)等）、ポリフォスファゼンの側鎖にトリフェニルアミンを導入したポリマーを用いたり（第42回高分子討論会予稿集20J21 (1993)）したEL素子が報告されている。しかし、これら単独ではホール輸送材料のイオン化ポテンシャルに起因するエネルギー障壁が存在するため、陽極からのホール注入性或いは発光層へのホール注入性を満足するものではない。また、前者のスターバーストアミンの場合、溶



【一般式（I-1）および（I-2）中、Arは、置換もしくは未置換の芳香環、置換もしくは未置換の芳香環数3～10の多核芳香環、または置換もしくは未置換の芳香環数2～10の縮合芳香環を表し、Xは置換もしくは未置換の2価の芳香族基を表し、kは0または1を表

解性が小さいために精製が難しく純度を上げることが困難であることや、後者のポリマーの場合、高い電流密度が得られず十分な輝度が得られていない等の問題も存在する。

【0007】一方、これらの問題の解決を目指し、単層構造のEL素子についても研究・開発が進められ、ポリ（p-フェニレンビニレン）等の導電性高分子を用いたり（Nature, Vol. 357, 477 (1992)等）、ホール輸送性ポリビニルカルバゾール中に電子輸送材料と蛍光色素を混入した（第38回応用物理学関係連合講演会予稿集31p-G-12 (1991)）素子が提案されているが、未だ輝度、発光効率等有機低分子化合物を用いた積層型EL素子には及ばない。

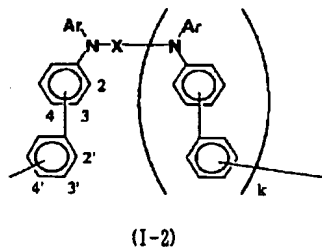
【0008】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、前記従来における諸問題を解決し、以下の目的を達成することを課題とする。即ち、本発明の目的は、十分な輝度を有し、安定性および耐久性に優れ、且つ大面積化可能であり製造容易な有機EL素子を提供することにある。

【0009】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するためホール輸送材料に関し鋭意検討した結果、下記一般式（I-1）および（I-2）で示される構造より選択された少なくとも1種を部分構造として含むホール輸送性ポリエステルが、有機EL素子として好適なホール注入特性、ホール移動度、薄膜形成能を有することを見出し、本発明を完成するに至った。すなわち、少なくとも一方が透明または半透明である一対の電極間に挟持された一つまたは複数の有機化合物層より構成されるものであって、有機化合物層の少なくとも一層が、下記一般式（I-1）および（I-2）で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなるホール輸送性ポリエステルを、少なくとも1種含有することを特徴とする有機EL素子である。

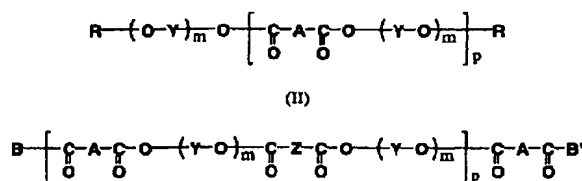
【化3】



す。】

【0010】このホール輸送性ポリエステルとしては、下記一般式（I1）または（I11）で示されるポリエステルを好適に挙げられる。

【化4】



(III)

〔一般式 (I-1) または (I-1') 中、A は上記一般式 (I-1) および (I-2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を表し、R は水素原子、アルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、または置換もしくは未置換のアラルキル基を表し、Y は 2 価アルコール残基を表し、Z は 2 価のカルボン酸残基を表し、B および B' は、それぞれ独立に基-O-(Y-O)_m-R または基-O-(Y-O)_m-CO-Z-CO-O-R' (ここで、R、Y、Z は上記したと同じ意味を有し、R' はアルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、または置換もしくは未置換のアラルキル基を表し、m は 1~5 の整数を表す。) を表し、m は 1~5 の整数を表し、p は 5~5,000 の整数を表す。〕

【0011】本発明の有機 EL 素子において、有機化合物層は、機能分離型のもの、例えば、少なくともホール輸送層および発光層から構成され、該ホール輸送層が前記一般式 (I-1) および (I-2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰返し単位よりなるホール輸送性ポリエステルを含有してなるものや、キャリア輸送能と発光能を兼ね備えたもの、すなわち、有機化合物層が発光層のみから構成されてなり、該発光層が前記一般式 (I-1) および (I-2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部

分構造として含む繰返し単位よりなるホール輸送性ポリエステルを含有してなるもののいずれでもよい。

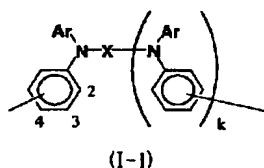
【0012】本発明の有機 EL 素子において、有機化合物層が発光層のみから構成される場合、該発光層には、電荷輸送性材料 (上記特定のホール輸送性ポリエステル以外のホール輸送材料、電子輸送材料) を含んでもよい。

【0013】

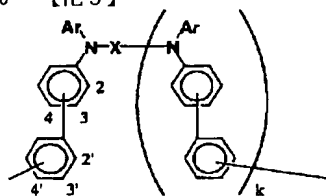
【発明の実施の形態】本発明の有機 EL 素子は、少なくとも一方が透明または半透明である陽極および陰極よりなる一対の電極間に挟持された一つまたは複数の有機化合物層より構成され、該有機化合物層の少なくとも一層が、下記一般式 (I-1) および (I-2) で示される構造から選択された少なくとも 1 種を部分構造として含む繰返し単位よりなるホール輸送性ポリエステル (以下、単に「ホール輸送性ポリエステル」ということがある) を 1 種以上含有する。本発明の有機 EL 素子は、前記ホール輸送性ポリエステルを含有してなる層を有することで、十分な輝度を有し、安定性および耐久性に優れる。さらに、前記ホール輸送性ポリエステルを用いることで、大面積化可能であり、容易に製造可能である。

【0014】

【化 5】



(I-1)



(I-2)

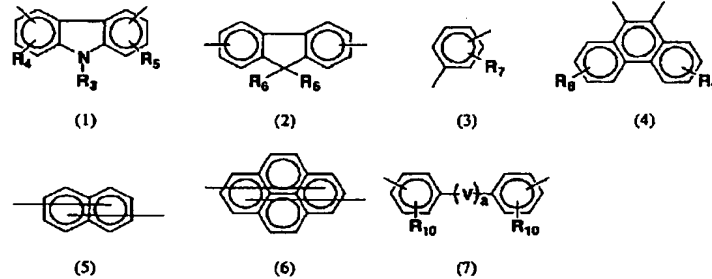
【0015】一般式 (I-1) および (I-2) 中、Ar は、置換もしくは未置換の芳香環、置換もしくは未置換の芳香環数 3~10 の多核芳香環、または置換もしくは未置換の芳香環数 2~10 の縮合芳香環を表す。置換基としては、アルキル基、アルコキシ基、置換アミノ基、ハロゲン原子、置換もしくは未置換のアリール基、アラルキル基等が挙げられる。アルキル基としては、炭素数 1~10 のものが好ましく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基等が挙げられる。アルコキシ基としては、炭素数 1~10 のものが好ましく、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基等が挙げられる。アリール基とし

ては、炭素数 6~20 のものが好ましく、例えば、フェニル基、トリル基等が挙げられる。アラルキル基としては、炭素数 7~20 のものが好ましく、例えば、ベンジル基、フェネチル基等が挙げられる。置換アミノ基の置換基としては、アルキル基、アリール基、アラルキル基等が挙げられ、具体例は前述の通りである。また、置換アリール基、置換アラルキル基の置換基としては、水素原子、アルキル基、アルコキシ基、置換アミノ基、ハロゲン原子等が挙げられる。

【0016】一般式 (I-1) および (I-2) 中、X は置換もしくは未置換の 2 価の芳香族基を表し、具体的には下記の式 (1)~(7) から選択された基が挙げら

れる。

【0017】



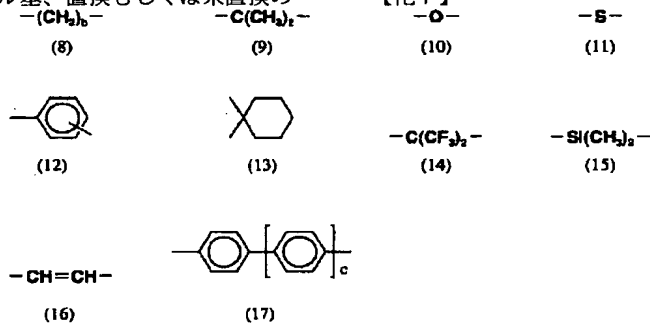
【0018】式(1)～(7)中、 R_3 は、水素原子、炭素数1～4のアルキル基、置換もしくは未置換のフェニル基、または置換もしくは未置換のアラルキル基を表し、 $R_4 \sim R_{10}$ は、それぞれ独立に水素原子、炭素数1～4のアルキル基、炭素数1～4のアルコキシル基、置換もしくは未置換のフェニル基、置換もしくは未置換の

【化6】

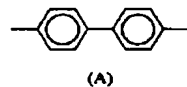
アラルキル基、またはハロゲン原子を表し、 a は0または1を意味し、 V は下記の式(8)～(17)から選択された基を表す。なお、(8)～(17)中、 b は1～10の整数を意味し、 c は1～3の整数を意味する。

【0019】

【化7】



【0020】中でも、 X が下記構造式(A)または(B)で示されるビフェニレン構造を有する場合、「The Sixth International Congress on Advances in Non-impact Printing Technology」



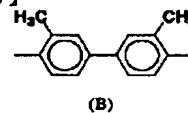
【0022】一般式(1-1)および(1-2)中、 k は0または1を表す。

【0023】以下、一般式(1-1)および(1-2)で示される構造の具体例を示す。本発明は、これら具体例に限定されるわけではない。なお、表において、構造番号1～40、72～100は一般式(1-1)で示さ

gies, 306, (1990)」にも報告されているように、モビリティが高いポリマーが得られることから、特に好ましい。

【0021】



















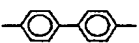
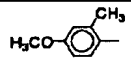
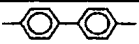

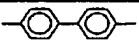

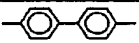

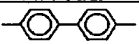

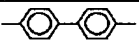
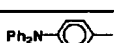
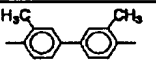

【化8】



れる構造の具体例を示し、構造番号41～71、101～124は一般式(1-2)で示される構造の具体例を示す。

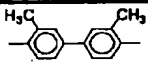

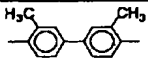

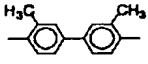

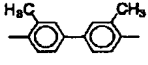

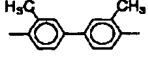

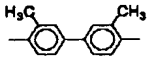

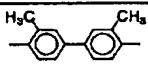

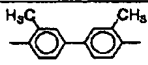

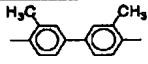
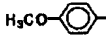
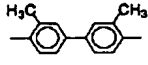

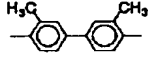

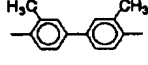

【0024】

【表1】

構造	k	X	Ar	結合位置
1	0			3
2	0			4
3	0			3
4	0			4
5	1			2
6	1			3
7	1			4
8	1			3
9	1			4
10	1			4
11	1			3
12	1			4
13	1			3
14	1			4
15	1			3
16	1			3

【0025】

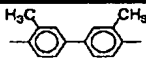
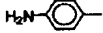
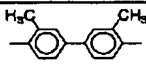
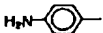
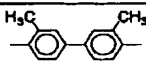
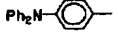
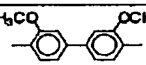

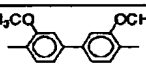
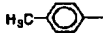
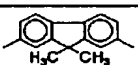

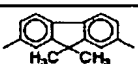

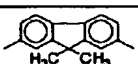
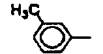
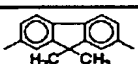
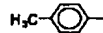
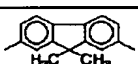
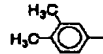
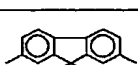
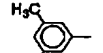


【表2】

構造	k	X	Ar	結合位置
17	1			4
18	1			3
19	1			3
20	1			3
21	1			3
22	1			3
23	1			4
24	1			4
25	1			3
26	1			4
27	1			3
28	1			4

90

【0026】

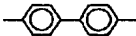

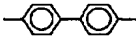

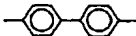

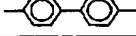

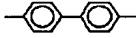

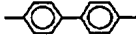

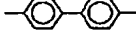

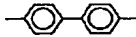

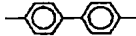

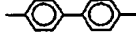

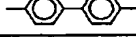

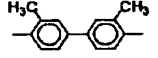

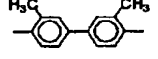

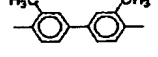

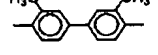

【表3】

構造	k	X	Ar	結合位置
29	1			3
30	1			4
31	1			4
32	1			3
33	1			3
34	1			3
35	1			3
36	1			3
37	1			3
38	1			3
39	1			3
40	1			3

30

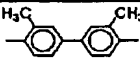

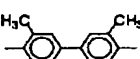

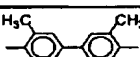

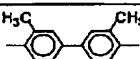

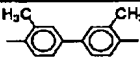

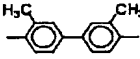

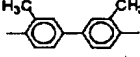

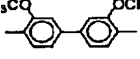

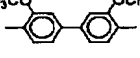

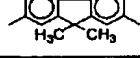

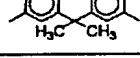

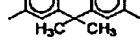

【0027】

【表4】

構造	k	X	Ar	結合位置
41	0			4, 4'
42	0			4, 4'
43	1			4, 4'
44	1			4, 4'
45	1			4, 4'
46	1			4, 4'
47	1			4, 4'
48	1			4, 4'
49	1			4, 4'
50	1			4, 4'
51	1			4, 4'
52	1			4, 4'
53	1			4, 4'
54	1			4, 4'
55	1			4, 4'

【0028】

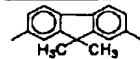

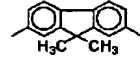

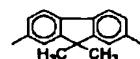

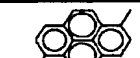

【表5】

構造	k	X	Ar	結合位置
56	1			4, 4'
57	1			4, 4'
58	1			4, 4'
59	1			4, 4'
60	1			4, 4'
61	1			4, 4'
62	1			4, 4'
63	1			4, 4'
64	1			4, 4'
65	1			4, 4'
66	1			4, 4'
67	1			4, 4'

30


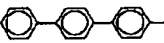

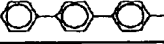



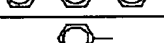


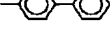

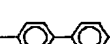


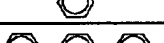
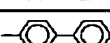
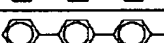
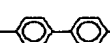

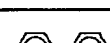

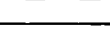



【0029】

【表6】

構造	k	X	Ar	結合位置
68	1			4, 4'
69	1			4, 4'
70	1			4, 4'
71	1			4, 4'

【0030】

【表7】

構造	k	X	Ar	結合位置
72	0			3
73	0			2
74	0			3
75	0			4
76	0			4
77	1			4
78	1			4
79	1			2
80	1			3
81	1			3
82	1			4
83	1			3
84	1			4

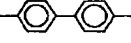

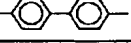
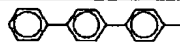
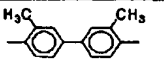

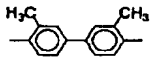

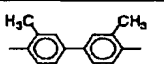

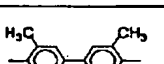



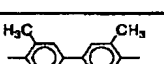

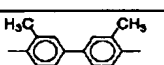
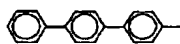
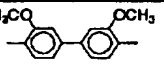
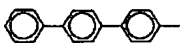
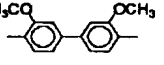

30

【0031】

【表8】

40

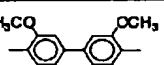

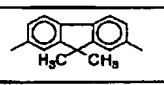
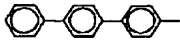
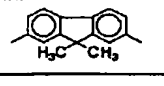

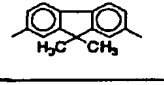

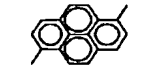
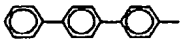
50

構造	k	X	Ar	結合位置
85	1			4
86	1			4
87	1			3
88	1			3
89	1			4
90	1			4
91	1			3
92	1			4
93	1			4
94	1			4
95	1			4

30


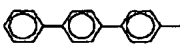

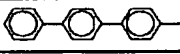






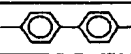
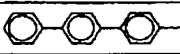
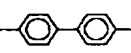


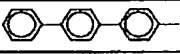
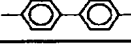
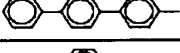
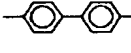

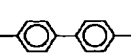

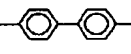

【0032】

【表9】

構造	k	X	Ar	結合位置
96	1			4
97	1			4
98	1			4
99	1			4
100	1			4

【0033】

【表10】

構造	k	X	Ar	結合位置
101	0			4, 4'
102	0			4, 4'
103	0			4, 4'
104	0			4, 4'
105	0			4, 4'
106	0			4, 4'
107	0			4, 4'
108	0			4, 4'
109	1			4, 4'
110	1			4, 4'
111	1			4, 4'
112	1			4, 4'

【0034】

30 【表11】

構造	k	X	Ar	結合位置
113	1			4, 4'
114	1			4, 4'
115	1			4, 4'
116	1			4, 4'
117	1			4, 4'
118	1			4, 4'
119	1			4, 4'
120	1			4, 4'
121	1			4, 4'
122	1			4, 4'
123	1			4, 4'
124	1			4, 4'

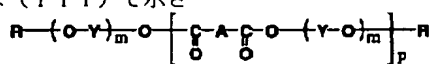
30

【0035】一般式(1-1)および(1-2)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰り返し単位よりなるホール輸送性ポリエステルとしては、下記一般式(11)または(111)で示さ

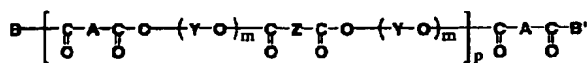
れるホール輸送性ポリエステルが好適に使用される。

【0036】

【化9】



(II)



(III)

【0037】一般式(11)または(111)中、Aは上記一般式(1-1)および(1-2)で示される構造から選択された少なくとも1種を表し、一つのポリマー中に2種類以上の構造Aが含まれてもよい。

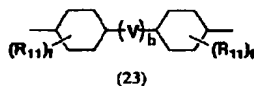
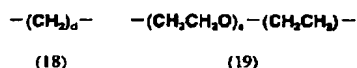
【0038】一般式(11)または(111)中、Rは水素原子、アルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、または置換もしくは未置換のアラルキル基を表す。アルキル基としては、炭素数1~10のものが好ましく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソブ

ロピル基等が挙げられる。アリール基としては、炭素数6~20のものが好ましく、例えば、フェニル基、トリル基等が挙げられる。アラルキル基としては、炭素数7~20のものが好ましく、例えば、ベンジル基、フェネチル基等が挙げられる。また、置換アリール基、置換アラルキル基の置換基としては、水素原子、アルキル基、アルコキシ基、置換アミノ基、ハロゲン原子等が挙げられる。

【0039】一般式(11)または(111)中、Bお

50

よび B' は、それぞれ独立に基-O-(Y-O)m-R または基-O-(Y-O)m-CO-Z-CO-O-R' を表す。ここで、R、Y、Z は前記したものと同意義を有し、R' はアルキル基、置換もしくは未置換のアリール基、または置換もしくは未置換のアラルキル基を表し、m は 1~5 の整数を表し、p は 5~5, 000 の整数を表すが、好ましくは 10~1, 000 の範囲であ

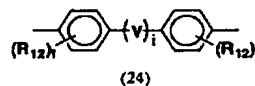
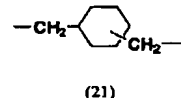
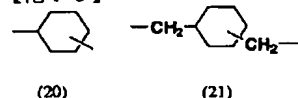


る。

【0040】一般式 (I I) または (I I I) 中、Y は 2 価アルコール残基を表し、Z は 2 価のカルボン酸残基を表す。Y および Z は、具体的には下記の式 (18) ~ (24) から選択された基が挙げられる。

【0041】

【化 10】








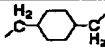





【0042】式 (18) ~ (24) 中、R₁₁ および R₁₂ は、それぞれ独立に水素原子、炭素数 1~4 のアルキル基、炭素数 1~4 のアルコキシル基、置換もしくは未置換のフェニル基、置換もしくは未置換のアラルキル基、またはハロゲン原子を表し、d および e はそれぞれ独立に 1~10 の整数を意味し、f および g は、それぞれ独立に 0、1 または 2 の整数を意味し、h および i はそれぞれ独立に 0 または 1 を意味し、V は前記したものと同意義を有する。

【0043】以下、一般式 (I I) および (I I I) で示される上記のホール輸送性ポリエステル具体例を示す。本発明は、これら具体例に限定されるわけではない。なお、表において、モノマーの列の A の欄の番号

は、前記一般式 (I-1) および (I-2) で示される構造の具体例である構造番号に対応している。また、Z の欄が「-」であるものは一般式 (I I) で示されるホール輸送性ポリエステルの具体例を示し、それ以外は一般式 (I I I) で示されるホール輸送性ポリエステルの具体例を示す。なお、具体例においては、一般式 (I I) および (I I I) における末端基を示す R、B、或いは B' は示さないが、上記に従って適宜組み合わせることができる。以下、各番号を付した具体例、例えば、15 の番号を付した具体例は例示化合物 (15) という。


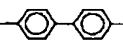




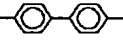







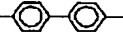
【0044】

【表 12】

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(1)	1	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	81
(2)	2	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	85
(3)	4	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	93
(4)	4	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	89
(5)	4	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		2	87
(6)	4	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		2	58
(7)	4	—		—	1	96
(8)	4	—		$-(\text{CH}_2)_4-$	1	47
(9)	4	—		—	1	32
(10)	8	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	47
(11)	8	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	2	30
(12)	7	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	57
(13)	7	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	2	29
(14)	7	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	40
(15)	8	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	$-(\text{CH}_2)_4-$	2	39
(16)	9	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	33
(17)	10	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	42
(18)	16	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	44
(19)	16	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	35
(20)	16	—	$-(\text{CH}_2)_4-$		1	33
(21)	16	—		—	1	30
(22)	16	—		—	1	25

【0045】







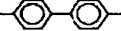

【表13】

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(23)	16	—			1	32
(24)	18	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	39
(25)	19	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	34
(26)	20	—		—	1	27
(27)	21	—		—	1	25
(28)	22	—			1	24
(29)	23	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	34
(30)	23	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	28
(31)	23	—		—	1	27
(32)	23	—		—	1	23
(33)	25	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	45
(34)	28	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	34
(35)	32	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	38
(36)	33	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	27
(37)	33	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	30
(38)	33	—		—	1	28
(39)	33	—		—	1	27
(40)	33	—			1	24
(41)	34	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	33

30

【0046】

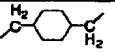
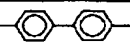







【表14】

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(42)	35	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	29
(43)	36	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	27
(44)	37	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	25
(45)	38	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	22
(46)	39	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	21
(47)	40	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	19
(48)	41	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	52
(49)	42	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	47
(50)	43	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	51
(51)	43	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	42
(52)	43	—		—	1	39
(53)	43	—		—	1	32
(54)	44	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	29
(55)	45	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	35
(56)	46	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	45
(57)	47	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	34
(58)	48	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	31
(59)	52	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	43
(60)	52	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	33
(61)	52	—		—	1	30
(62)	53	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	42
(63)	54	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	39
(64)	55	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	37
(65)	55	—			1	36
(66)	56	—		—	1	35

30

【0047】



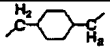






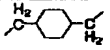




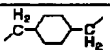

【表15】

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(67)	56	—			1	33
(88)	57	—		—	1	36
(69)	58	—	—CH ₂ CH ₂ —	—	—	39
(70)	71	—	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	42
(71)	1/6	1/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	62
(72)	6/20	1/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	38
(73)	6/20	1/1		—	1	31
(74)	6/20	1/1	—CH ₂ CH ₂ —		1	35
(75)	6/29	1/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	50
(76)	6/29	1/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	2	37
(77)	6/31	1/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	43
(78)	6/8/29	1/1/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	40
(79)	8/29	1/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	36
(80)	8/29	1/1	—CH ₂ CH ₂ —		1	30
(81)	8/29	1/2	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	35
(82)	8/29	2/1	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	42
(83)	72	—	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	60
(84)	73	—	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	54
(85)	75	—	—CH ₂ CH ₂ —	—	1	65
(86)	75	—	—CH ₂ CH ₂ —		1	62
(87)	75	—	—CH ₂ CH ₂ —		1	55
(88)	75	—		—	1	30

30





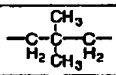


【0048】

【表16】

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(89)	75	—		—	1	63
(90)	75	—		$-(CH_2)_4-$	1	57
(91)	75	—		—	1	32
(92)	76	—	$-CH_2CH_2-$	—	1	70
(93)	76	—	$-CH_2CH_2-$		2	55
(94)	77	—	$-CH_2CH_2-$	$-(CH_2)_4-$	1	40
(95)	77	—		—	1	51
(96)	78	—		—	1	48
(97)	79	—	$-CH_2CH_2-$	—	1	43
(98)	79	—	$-CH_2CH_2-$		1	34
(99)	80	—		—	1	32
(100)	81	—		—	1	36
(101)	81	—			—	32
(102)	82	—	$-CH_2CH_2-$	—	1	45
(103)	82	—	$-(CH_2)_4-$		1	35
(104)	82	—		—	1	37
(105)	82	—		—	1	34
(106)	82	—			1	29

【0049】








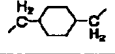
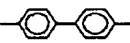



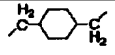
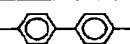


【表17】

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(107)	83	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	55
(108)	85	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	36
(109)	86	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	30
(110)	86	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	26
(111)	86	—		—	1	27
(112)	86	—		—	1	25
(113)	87	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	36
(114)	87	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	30
(115)	89	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	34
(116)	93	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	29
(117)	93	—		—	1	26
(118)	94	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	29
(119)	95	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	32
(120)	96	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	28
(121)	97	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	28
(122)	98	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	33
(123)	99	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	30
(124)	99	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	27
(125)	99	—		—	1	28
(126)	101	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	48
(127)	102	—	$-(\text{CH}_2)_4-$	$-(\text{CH}_2)_4-$	1	53
(128)	103	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	59
(129)	105	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	42

30


【0050】

【表18】

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(130)	105	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	34
(131)	105	—		—	1	36
(132)	106	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	40
(133)	107	—		—	1	34
(134)	108	—		—	1	30
(135)	109	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	35
(136)	109	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	31
(137)	109	—		—	1	33
(138)	109	—		—	1	30
(139)	110	—			1	39
(140)	111	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	36
(141)	111	—	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	31
(142)	111	—		—	1	34
(143)	111	—		—	1	29
(144)	112	—			1	26
(145)	75/80	1/1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	30
(146)	75/80	1/1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	2	27
(147)	75/80	1/1			1	26
(148)	76/93	1/1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	27

【0051】

【表19】

化合物	モノマー		Y	Z	m	p
	A	比率				
(149)	75/93	1/1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	2	24
(150)	75/77/93	1/1/1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	28
(151)	77/93	1/1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$		1	26
(152)	77/93	1/2	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	29
(153)	77/93	2/1	$-\text{CH}_2\text{CH}_2-$	—	1	34

40

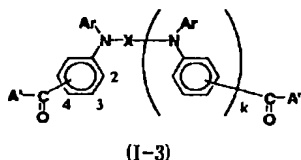
【0052】一般式(ⅠⅠ)および(ⅠⅠⅠ)で示されるホール輸送性ポリエステルは、 M_n は、10,000~300,000の範囲にあるのが好ましい。

【0053】一般式(ⅠⅠ)および(ⅠⅠⅠ)で示されるホール輸送性ポリエステルは、下記構造式(Ⅰ-3)および(Ⅰ-4)で示されるホール輸送性モノマーを、例えば、第4版実験化学講座第28巻(丸善、1992)、等に記載された公知の方法で重合させることによ

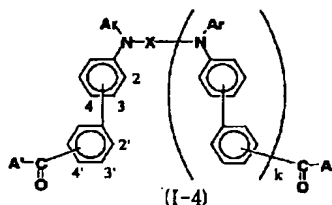
って合成することができる。なお、構造式(Ⅰ-3)および(Ⅰ-4)中、Ar、X、T、kは、前記一般式(Ⅰ-1)および(Ⅰ-2)におけるAr、X、T、kと同様であり、A'は水酸基、ハロゲン原子、または基 $-\text{O}-\text{R}_{13}$ を表し、R₁₃はアルキル基、置換または未置換のアリール基、またはアラルキル基を表す。

【0054】

【化11】



(I-3)



(X-4)

【００５５】一般式（Ⅰ）で示されるホール輸送性ポリエステルは、例えば、次のようにして合成することができる。Ａ' が水酸基の場合には、前述の構造式（Ⅰ－３）および（Ⅰ－４）で示されるホール輸送性モノマーを、 $\text{HO}-(\text{Y}-\text{O})_m-\text{H}$ で示される２価アルコール類とほぼ当量混合し、酸触媒を用いて重合する。酸触媒としては、硫酸、トルエンスルホン酸、トリフルオロ酢酸等、通常のエステル化反応に用いるものが使用でき、ホール輸送性モノマー１重量部に対して、 $1/10$ 、 $0.00\sim 1/10$ 重量部、好ましくは $1/1$ 、 $0.00\sim 1/50$ 重量部の範囲で用いられる。重合中に生成する水を除去するために、水と共沸可能な溶剤を用いることが好ましく、トルエン、クロロベンゼン、１－クロロナフタレン等が有効であり、ホール輸送性モノマー１重量部に対して、 $1\sim 100$ 重量部、好ましくは $2\sim 50$ 重量部の範囲で用いられる。反応温度は任意に設定できるが、重合中に生成する水を除去するために、溶剤の沸点で反応させることが好ましい。

【 0 0 5 6 】 反応終了後、溶剤を用いなかった場合には溶解可能な溶剤に溶解させる。溶剤を用いた場合には、反応溶液をそのまま、メタノール、エタノール等のアルコール類や、アセトン等のポリマーが溶解しにくい貧溶剤中に滴下し、ホール輸送性ポリエステルを析出させ、正孔輸送性ポリエステルを分離した後、水や有機溶剤で十分洗浄し、乾燥させる。更に、必要であれば適当な有機溶剤に溶解させ、貧溶剤中に滴下し、ホール輸送性ポリエステルを析出させる再沈殿処理を繰り返してもよい。再沈殿処理の際には、メカニカルスターラー等で、効率よく攪拌しながら行うことが好ましい。再沈殿処理の際にホール輸送性ポリエステルを溶解させる溶剤は、ホール輸送性ポリエステル 1 重量部に対して、1 ~ 1 0 0 重量部、好ましくは 2 ~ 5 0 重量部の範囲で用いられる。また、貧溶剤はホール輸送性ポリエステル 1 重量部に対して、1 ~ 1, 0 0 0 重量部、好ましくは 1 0 ~ 5 0 0 重量部の範囲で用いられる。

【００５７】Ａ' がハロゲンの場合には、前述の構造式（１－３）および（１－４）で示されるホール輸送性モノマーを、 $\text{HO}-(\text{Y}-\text{O})_m-\text{H}$ で示される２価アルコール類とほぼ当量混合し、ピリジンやトリエチルアミン等の有機塩基性触媒を用いて重合する。有機塩基性触媒は、ホール輸送性モノマー１当量に対して、１～１０当量、好ましくは２～５当量の範囲で用いられる。溶剤としては、塩化メチレン、テトラヒドロフラン（ＴＨ

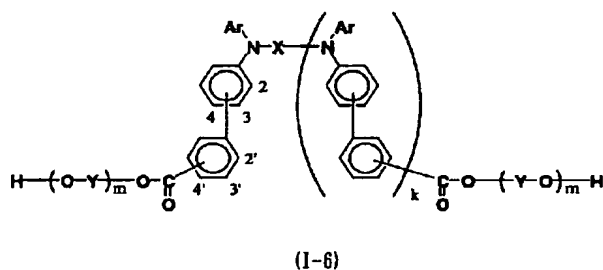
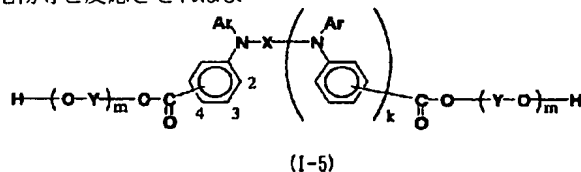
F)、トルエン、クロロベンゼン、1-クロロナフタレン等が有効であり、ホール輸送性モノマー1重量部に対して、1~100重量部、好ましくは2~50重量部の範囲で用いられる。反応温度は任意に設定できる。重合後は、前述のように再沈殿処理し、精製する。

【００５８】また、 $\text{HO}-(\text{Y}-\text{O})_m-\text{H}$ で示される２価アルコール類がビスフェノール等のような酸性度の高い２価アルコール類の場合には、界面重合法も用いることができる。すなわち、２価アルコール類を水に加え、当量の塩基を加えて溶解させた後、激しく攪拌しながら２価アルコール類と前述の構造式（１－３）および（１－４）で示される当量のアール輸送性モノマー溶液を加えることによって重合できる。この際、水は２価アルコール類１重量部に対して、１～１，０００重量部、好ましくは１０～５００重量部の範囲で用いられる。アール輸送性モノマーを溶解させる溶剤としては、塩化メチレン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、トルエン、クロロベンゼン、１－クロロナフタレン等が有効である。反応温度は任意に設定でき、反応を促進するために、アンモニウム塩、スルホニウム塩等の相間移動触媒を用いることが効果的である。相間移動触媒は、アール輸送性モノマー１重量部に対して、０．１～１０重量部、好ましくは０．２～５重量部の範囲で用いられる。

【0059】 A' が $-O-R_{13}$ の場合には、前述の構造式(1-3)および(1-4)で示されるホール輸送性モノマーに、 $HO-(Y-O)m-H$ で示される2価アルコール類を過剰に加え、硫酸、リン酸等の無機酸、チタンアルコキシド、カルシウムおよびコバルト等の酢酸塩或いは炭酸塩、亜鉛や鉛の氧化物を触媒に用いて加熱し、エステル交換により合成できる。2価アルコール類はホール輸送性モノマー1当量に対して、2~100当量、好ましくは3~50当量の範囲で用いられる。触媒はホール輸送性モノマー1重畳部に対して、1/10、0.00~1重畳部、好ましくは1/1、0.00~1/2重畳部の範囲で用いられる。反応は、反応温度200~300℃で行い、基 $-O-R_{13}$ から基 $-O-(Y-O)m-H$ へのエステル交換終了後は、 $HO-(Y-O)m-H$ の脱離による重合を促進するため、減圧下で反応させることが好ましい。また、 $HO-(Y-O)m-H$ と共沸可能な1-クロロナフタレン等の高沸点溶剤を用いて、常圧下で $HO-(Y-O)m-H$ を共沸で除きながら反応させることもできる。

【0060】一方、一般式(111)で示されるホール

輸送性ポリエステルは、例えば、次のようにして合成することができる。前述の一般式(11)で示されるホール輸送性ポリエステルの合成におけるそれぞれの場合において、2価アルコール類を過剰に加えて反応させることによって下記構造式(1-5)および(1-6)で示される化合物を生成した後、これをホール輸送性モノマーとして用いて上記と同様の方法で、2価カルボン酸または2価カルボン酸ハロゲン化物等と反応させればよ



【0062】次に、本発明の有機EL素子の層構成について詳記する。本発明の有機EL素子は、少なくとも一方が透明または半透明である一対の電極と、それら電極間に挟持された発光層を含む一つまたは複数の有機化合物層より構成され、該有機化合物層の少なくとも1層に前記ホール輸送性ポリエステルを含有してなる。本発明の有機EL素子においては、有機化合物層が1つの場合は、有機化合物層はキャリア輸送能を持つ発光層を意味し、該発光層が前記ホール輸送性ポリエステルを含有してなる。また、有機化合物層が複数の場合(機能分離型の場合)は、その少なくとも一つが発光層であり、他の有機化合物層は、キャリア輸送層、すなわち、ホール輸送層、電子輸送層、またはホール輸送層と電子輸送層よりなるものを意味し、これらの少なくとも一層が前記ホール輸送性ポリエステルを含有してなる。具体的には、例えば、有機化合物層が少なくともホール輸送層および発光層から構成され、該ホール輸送層が前記ホール輸送性ポリエステルを含有してなるものや、有機化合物層が発光層のみから構成されてなり、該発光層が前記ホール輸送性ポリエステルを含有してなるもの等が挙げられる。

【0063】以下、図面を参照しつつ、より詳細に説明するが、これらに限定されるわけではない。図1～図4は、本発明の有機EL素子の層構成を説明するための模式的断面図であって、図1、図2、図4の場合は、有機

く、それによってホール輸送性ポリエステルを得ることができる。なお、構造式(1-5)および(1-6)中、Ar、X、Y、T、kおよびmは、前記一般式(1-1)および(1-2)におけるAr、X、Y、T、kおよびmと同様である。

【0061】

【化12】

化合物層が複数の場合の一例であり、図3の場合は、有機化合物層が1つの場合の例を示す。なお、図1～図4において、同様の機能を有するものは同じ符号を付して説明する。

【0064】図1に示す有機EL素子は、透明絶縁体基板1上に、透明電極2、キャリア輸送能を持つ発光層6、電子輸送層5及び背面電極7を順次積層してなる。図2に示す有機EL素子は、透明絶縁体基板1上に、透明電極2、ホール輸送層3、発光層4、電子輸送層5及び背面電極7を順次積層してなる。図3に示す有機EL素子は、透明絶縁体基板1上に、透明電極2、キャリア輸送能を持つ発光層6及び背面電極7を順次積層してなる。図4に示す有機EL素子は、透明絶縁体基板1上に、透明電極2、ホール輸送層3、キャリア輸送能を持つ発光層6及び背面電極7を順次積層してなる。以下、各々を詳しく説明する。なお、前記ホール輸送性ポリエステルを含む有機化合物層は、図2、図4に示される有機EL素子の層構成の場合、ホール輸送層3として作用し、また、図1、図3に示される有機EL素子の層構成の場合、キャリア輸送能を持つ発光層5として作用する。以下、各々を詳しく説明する。

【0065】図1～4に示される有機EL素子の層構成の場合、透明絶縁体基板1は、発光を取り出すため透明なものが好ましく、ガラス、プラスチックフィルム等が用いられる。透明電極2は、透明絶縁体基板と同様に発

光を取り出すため透明であって、かつホール注入を行うため仕事関数の大きなものが好ましく、酸化スズインジウム（ITO）、酸化スズ（NE SA）、酸化インジウム、酸化亜鉛等の酸化膜、および蒸着或いはスパッタされた金、白金、パラジウム等が用いられる。

【0066】図2、図4に示される有機EL素子の層構成の場合、ホール輸送層3はホール輸送性ポリエステル単独で形成されていてもよいが、ホール移動度を調節するためにホール輸送性ポリエステル以外のホール輸送材料を1重量%ないし50重量%の範囲で混合分散して形成されていてもよい。このようなホール輸送材料としては、テトラフェニレンジアミン誘導体、トリフェニルアミン誘導体、カルバゾール誘導体、スチルベン誘導体、アリールヒドラゾン誘導体、ポルフィリン系化合物等が挙げられるが、ホール輸送性ポリエステルとの相容性が良いことから、テトラフェニレンジアミン誘導体が好ましい。また、他の汎用の樹脂等との混合でもよい。

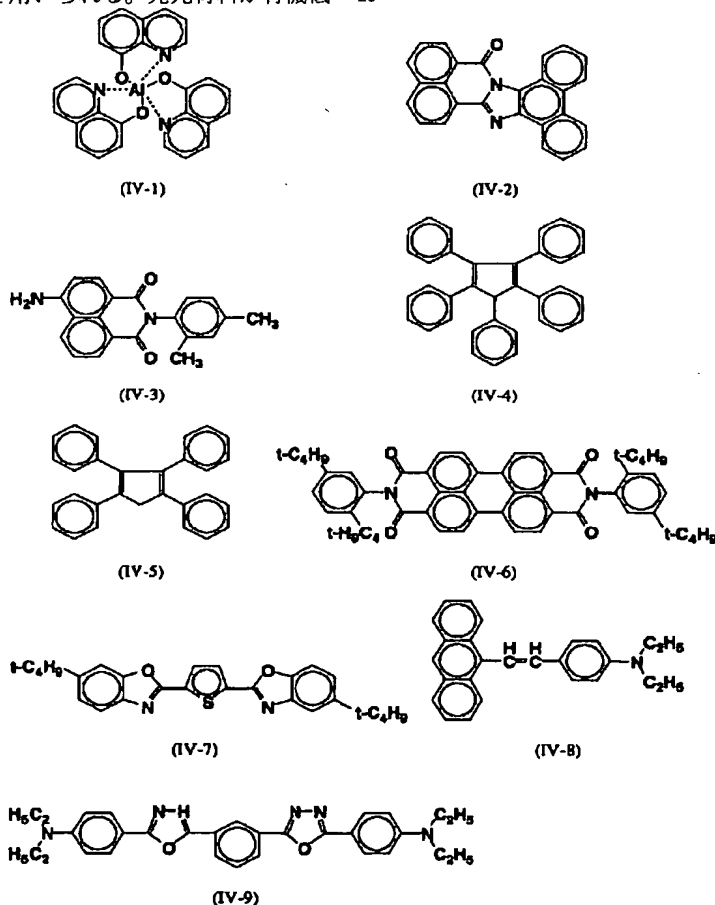
【0067】図2に示される有機EL素子の層構成の場合、発光層4には、固体状態で高い蛍光量子収率を示す化合物が発光材料として用いられる。発光材料が有機低

分子の場合、真空蒸着法もしくは低分子と結着樹脂を含む溶液または分散液を塗布・乾燥することにより良好な薄膜形成が可能であることが条件である。また、高分子の場合、それ自身を含む溶液または分散液を塗布・乾燥することにより良好な薄膜形成が可能であることが条件である。好適には、有機低分子の場合、キレート型有機金属錯体、多核または縮合芳香環化合物、ペリレン誘導体、クマリン誘導体、スチリルアリーレン誘導体、シロール誘導体、オキサゾール誘導体、オキサチアゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体等が、高分子の場合、ポリパラフェニレン誘導体、ポリパラフェニレンビニレン誘導体、ポリチオフェン誘導体、ポリアセチレン誘導体等が挙げられる。好適な具体例として、下記の化合物

(IV-1)～(IV-15)が用いられるが、これらに限定されたものではない。なお、構造式(IV-13)～(IV-15)中、nおよびxは1以上の整数を示す。

【0068】

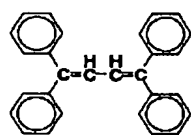
【化13】



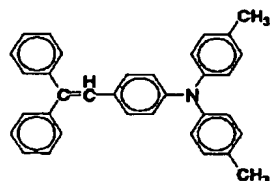
【0069】

【化14】

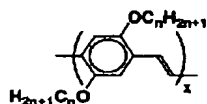
49



(IV-10)

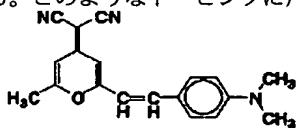


(IV-12)

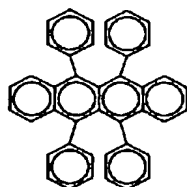


(IV-14)

【0070】また、有機EL素子の耐久性向上或いは発
光効率の向上を目的として、上記の発光材料中にゲスト
材料として発光材料と異なる色素化合物をドーピングし
てもよい。真空蒸着によって発光層を形成する場合、共
蒸着によってドーピングを行い、溶液または分散液を塗
布・乾燥することで発光層を形成する場合、溶液または
分散液中に混合することでドーピングを行う。発光層中
における色素化合物のドーピングの割合としては0.0
01重量%～40重量%程度、好ましくは0.01重量
%～10重量%程度である。このようなドーピングに用



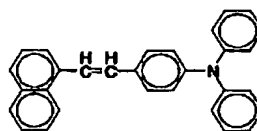
(V-1)



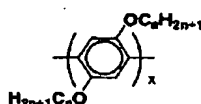
(V-3)

【0072】図1及び図2に示される有機EL素子の層
構成の場合、電子輸送層5は、電子輸送性材料により形
成される。この電子輸送層5は、例えば、発光材料（発
光層）が、明確な電子輸送性を示さないものを用いる場
合に、有機EL素子に注入されるホールと電子のバランス
を調節したり、有機EL素子の耐久性向上或いは発光
効率の向上を図る目的で、発光層4或いはキャリア輸送

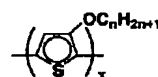
50



(IV-11)



(IV-13)

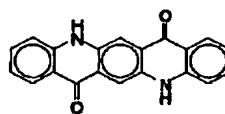


(IV-15)

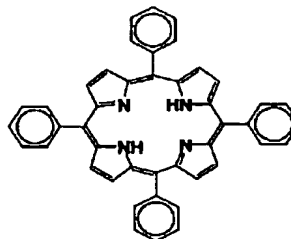
いられる色素化合物としては、発光材料との相容性が良
く、かつ発光層の良好な薄膜形成を妨げない有機化合物
が用いられ、好適にはDCM誘導体、キナクリドン誘導
体、ルブレン誘導体、ポルフィリン系化合物等が挙げら
れる。好適な具体例として、下記の化合物（V-1）～
（V-4）が用いられるが、これらに限定されたものでは
ない。

【0071】

【化15】



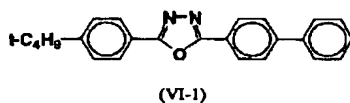
(V-2)



(V-4)

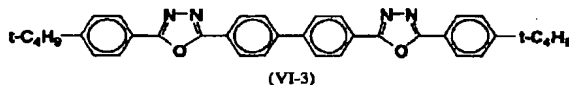
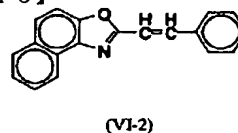
能を持つ発光層6と背面電極7との間に挿入される。こ
のような電子輸送層5に用いられる電子輸送材料として
は、真空蒸着法により良好な薄膜形成が可能な有機化
合物が用いられ、好適にはオキサジアゾール誘導体、ニト
ロ置換フルオレノン誘導体、ジフェノキノン誘導体、チ
オピランジオキソド誘導体、フルオレニリデンメタン誘
導体等が挙げられる。好適な具体例として、下記の化合

物(VI-1)～(VI-3)が用いられるが、これらに限定されたものではない。



【0073】

【化16】

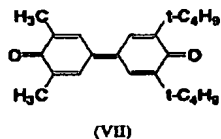


10

【0074】図1、図3に示される有機EL素子の層構成の場合、キャリア輸送能を持つ発光層6は少なくとも上記ホール輸送性ポリエステル中に発光材料を50重量%以下分散させた有機化合物層であり、発光材料としては前記化合物(IV-1)ないし化合物(IV-12)が好適に用いられるが、有機EL素子に注入されるホールと電子のバランスを調節するために電子輸送材料を10重量%～50重量%分散させてもよい。このような電子輸送材料としては、上記ホール輸送性ポリエステルと強い電子相互作用を示さない有機化合物が用いられ、好適には下記の化合物(VI-1)が用いられるが、これに限定されるものではない。同様にホール移動度を調節するために、ホール輸送性ポリエステル以外のホール輸送材料、好ましくはテトラフェニレンジアミン誘導体を適量同時に分散させて用いてもよい。また、発光材料と異なる色素化合物をドーピングしてもよい。一方で、図4に示される有機EL素子の層構成の場合、キャリア輸送能を持つ発光層6は、電子輸送材料中に発光材料を50重量%以下分散させた有機化合物層であり、発光材料としては前記化合物(IV-1)ないし化合物(IV-12)が好適に用いられるが、有機EL素子に注入されるホールと電子のバランスを調節するためにホール輸送材料を10重量%～50重量%分散させてもよい。

【0075】

【化17】



【0076】図1～図4に示される有機EL素子の層構成の場合、背面電極7には、真空蒸着可能で、電子注入を行うため仕事関数の小さな金属が使用されるが、特に好ましくはマグネシウム、アルミニウム、銀、インジウムおよびこれらの合金である。また、背面電極7上には、さらに素子の水分や酸素による劣化を防ぐために保護層を設けてもよい。具体的な保護層の材料としては、In、Sn、Pb、Au、Cu、Ag、Al等の金属、MgO、SiO₂、TiO₂等の金属酸化物、ポリエチレン樹脂、ポリウレタ樹脂、ポリイミド樹脂等の樹脂が挙

50

げられる。保護層の形成には、真空蒸着法、スパッタリング法、プラズマ重合法、CVD法、コーティング法が適用できる。

【0077】これら図1～図4に示される有機EL素子は、まず透明電極2の上に各有機EL素子の層構成に応じて、ホール輸送層3或いはキャリア輸送能を持つ発光層6を形成する。ホール輸送層3及びキャリア輸送能を持つ発光層6は、上記各材料を真空蒸着法、もしくは有機溶媒中に溶解或いは分散し、得られた塗布液を用いて前記透明電極2上にスピンコーティング法、ディップ法等を用いて製膜することにより形成する。

【0078】次に、各有機EL素子の層構成に応じて、ホール輸送層3、電子輸送層5、発光層4或いはキャリア輸送能を持つ発光層6は、上記各材料を、真空蒸着法、もしくは有機溶媒中に溶解或いは分散し、得られた塗布液を用いてスピンコーティング法、ディップ法等を用いて製膜することによって形成される。

【0079】形成されるホール輸送層3、発光層4及び電子輸送層5の膜厚は、各々0.1μm以下、特に0.03～0.08μmの範囲であることが好ましい。また、キャリア輸送能を持つ発光層6の膜厚は、0.03～0.2μm程度が好ましい。上記各材料(前記電荷輸送性ポリウレタン、発光材料等)の分散状態は分子分散状態でも微粒子分散状態でも構わない。塗布液を用いた製膜法の場合、分子分散状態とするためには、分散溶媒は上記各材料の共通溶媒を用いる必要があり、微粒子分散状態とするために分散溶媒は上記各材料の分散性及び溶解性を考慮して選択する必要がある。微粒子状に分散するためには、ボールミル、サンドミル、ペイントシェイカー、アトライター、ボールミル、ホモジェナイザー、超音波法等が利用できる。

【0080】そして、最後に、電子輸送層5或いはキャリア輸送能を持つ発光層6の上に背面電極7を真空蒸着法により形成することにより素子が完成される。

【0081】本発明の有機EL素子は、一対の電極間に、例えば、4～20Vで、電流密度1～200mA/cm²の直流電圧を印加することによって発光させることができる。

【0082】

【実施例】以下、本発明を、実施例を挙げてさらに具体

的に説明する。ただし、これら各実施例は、本発明を制限するものではない。

【0083】実施例に用いたホール輸送性ポリエステルは、例えば以下のようにして得た。

—合成例1〔例示化合物(12)〕—

N, N'—ジフェニル—N, N'—ビス〔4—メトキシカルボニルフェニル〕—〔1, 1'—ビフェニル〕—4, 4'—ジアミン2.0g、エチレングリコール8.0gおよびテトラブトキシチタン0.1gを50mlのフラスコに入れ、窒素気流下、200℃で3時間加熱攪拌した。N, N'—ジフェニル—N, N'—ビス〔4—メトキシカルボニルフェニル〕—〔1, 1'—ビフェニル〕—4, 4'—ジアミンが消費されたことを確認した後、0.5mmHgに減圧してエチレングリコールを留去しながら230℃に加熱し、3時間反応を続けた。その後、室温まで冷却し、トルエン50mlに溶解して不溶物を濾過し、その濾液を、メタノール250mlを攪拌している中に滴下してポリマーを析出させた。得られたポリマーを濾過し、十分にメタノールで洗浄した後乾燥させ、1.9gのホール輸送性ポリエステル〔例示化合物(12)〕を得た。分子量はGPCにて測定し、 $M_w = 3.42 \times 10^4$ (スチレン換算)であり、モノマーの分子量から求めたpは約57であった。

【0084】—合成例2〔例示化合物(102)〕—
N, N'—ビス(α-ナフチル)—N, N'—ビス〔4—メトキシカルボニルフェニル〕—〔1, 1'—ビフェニル〕—4, 4'—ジアミン2.0g、エチレングリコール8.0gおよびテトラブトキシチタン0.1gを50mlのフラスコに入れ、窒素気流下、200℃で3時間加熱攪拌した。N, N'—ビス(α-ナフチル)—N, N'—ビス〔4—メトキシカルボニルフェニル〕—〔1, 1'—ビフェニル〕—4, 4'—ジアミンが消費されたことを確認した後、0.5mmHgに減圧してエチレングリコールを留去しながら230℃に加熱し、3時間反応を続けた。その後、室温まで冷却し、トルエン50mlに溶解して不溶物を濾過し、その濾液を、メタノール250mlを攪拌している中に滴下してポリマーを析出させた。得られたポリマーを濾過し、十分にメタノールで洗浄した後乾燥させ、1.2gのホール輸送性ポリエステル〔例示化合物(102)〕を得た。分子量はGPCにて測定し、 $M_w = 3.20 \times 10^4$ (スチレン換算)であり、モノマーの分子量から求めたpは約45であった。

【0085】—合成例3〔例示化合物(109)〕—
N, N'—ビス(ターフェニル)—N, N'—ビス〔4—メトキシカルボニルフェニル〕—〔1, 1'—ビフェニル〕—4, 4'—ジアミン2.0g、エチレングリコール8.0gおよびテトラブトキシチタン0.1gを50mlのフラスコに入れ、窒素気流下、200℃で3時間加熱攪拌した。N, N'—ビス(4—メトキシ—2—

メチルフェニル)—N, N'—ビス〔4—メトキシカルボニルフェニル〕—〔1, 1'—ビフェニル〕—4, 4'—ジアミンが消費されたことを確認した後、0.5mmHgに減圧してエチレングリコールを留去しながら230℃に加熱し、3時間反応を続けた。その後、室温まで冷却し、トルエン50mlに溶解して不溶物を濾過し、その濾液を、メタノール250mlを攪拌している中に滴下してポリマーを析出させた。得られたポリマーを濾過し、十分にメタノールで洗浄した後乾燥させ、1.1gのホール輸送性ポリエステル〔例示化合物(109)〕を得た。分子量はGPCにて測定し、 $M_w = 2.68 \times 10^4$ (スチレン換算)であり、モノマーの分子量から求めたpは約30であった。

【0086】(実施例1)ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物(12)〕($M_w = 1.23 \times 10^5$)の5重量%ジクロロエタン溶液を調製し、0.1μmのポリテトラフルオロエチレン(PTFE)フィルターで濾過した。この溶液を用いて、2mm幅の短冊型ITO電極をエッチングにより形成したガラス基板上に、ディップ法により塗布し、膜厚約0.1μmのホール輸送層を形成した。十分乾燥させた後、発光材料として昇華精製した前記例示化合物(IV-1)をタングステンボートに入れ、真空蒸着法により蒸着して、ホール輸送層上に膜厚0.05μmの発光層を形成した。この時の真空度は 10^{-5} Torr、ボート温度は300℃であった。続いてMg-Ag合金を共蒸着により蒸着して、2mm幅、0.15μm厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。形成された有機EL素子の有効面積は0.04cm²であった。

【0087】(実施例2)ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物(12)〕($M_w = 3.42 \times 10^4$)1重量部、発光材料として前記例示化合物(IV-1)1重量部を混合し、10重量%ジクロロエタン溶液を調製し、0.1μmのPTFEフィルターで濾過した。この溶液を用いて、2mm幅の短冊型ITO電極をエッチングにより形成したガラス基板上に、ディップ法により塗布して膜厚0.15μmのキャリア輸送能を持つ発光層を形成した。充分乾燥させた後、Mg-Ag合金を共蒸着により蒸着して、2mm幅、0.15μm厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。形成された有機EL素子の有効面積は0.04cm²であった。

【0088】(実施例3)ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物(12)〕($M_w = 3.42 \times 10^4$)を2重量部、発光材料として前記例示化合物(IV-1)を0.1重量部、電子輸送材料として前記例示化合物(VI-1)を1重量部を混合し、10重量%ジクロロエタン溶液を調製し、0.1μmのPTFEフィルターで濾過した。この溶液を用いて、2mm幅の短冊型ITO電極をエッチングにより形成したガラス基板上に、ディップ法により塗布して膜厚0.15μmのキャリア輸

送能を持つ発光層を形成した。十分乾燥させた後、Mg-Ag合金を共蒸着により蒸着して、2mm幅、0.15μm厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。形成された有機EL素子の有効面積は0.04cm²であった。

【0089】（実施例4）ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物（12）〕の代わりに、ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物（102）〕（Mw=3.20×10⁴）を用いた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。

【0090】（実施例5）ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物（12）〕の代わりに、ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物（102）〕（Mw=3.20×10⁴）を用いた以外は、実施例2と同様にして有機EL素子を作製した。

【0091】（実施例6）ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物（12）〕の代わりに、ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物（102）〕（Mw=2.68×10⁴）を用いた以外は、実施例3と同様にして有機EL素子を作製した。

【0092】（実施例7）ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物（12）〕の代わりに、ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物（109）〕（Mw=3.20×10⁴）を用いた以外は、実施例1と同様にして有機EL素子を作製した。

【0093】（実施例8）ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物（12）〕の代わりに、ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物（109）〕（Mw=3.20×10⁴）を用いた以外は、実施例2と同様にして有機EL素子を作製した。

【0094】（実施例9）ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物（12）〕の代わりに、ホール輸送性ポリエステル〔例示化合物（109）〕（Mw=2.68×10⁴）を用いた以外は、実施例3と同様にして有機EL素子を作製した。

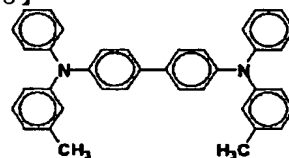
【0095】（比較例1）下記構造式（VII）で示されるホール輸送材料を1重量部、発光材料として前記例示化合物（IV-1）を1重量部、結着樹脂としてポリメチルメタクリレート（PMMA）を1重量部混合し、10重量%ジクロロエタン溶液を調製し、0.1μmのPTFEフィルターで濾過した。この溶液を用い

て、2mm幅の短冊型ITO電極をエッチングにより形成したガラス基板上に、ディップ法により塗布して膜厚0.15μmのキャリア輸送能を持つ発光層を形成した。十分乾燥させた後、Mg-Ag合金を共蒸着により蒸着して、2mm幅、0.15μm厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。形成された有機EL素子の有効面積は0.04cm²であった。

【0096】

【化18】

10



(VIII)

20

【0097】（比較例2）ホール輸送性ポリエステルとしてポリビニルカルバゾール（PVK）を2重量部、発光材料として前記例示化合物（IV-1）を0.1重量部、電子輸送材料として前記例示化合物（VI-1）を1重量部混合し、10重量%ジクロロエタン溶液を調製し、0.1μmのPTFEフィルターで濾過した。この溶液を用いて、2mm幅の短冊型ITO電極をエッチングにより形成したガラス基板上に、ディップ法により塗布して膜厚0.15μmのホール輸送層を形成した。十分乾燥させた後、Mg-Ag合金を共蒸着により蒸着して、2mm幅、0.15μm厚の背面電極をITO電極と交差するように形成した。形成された有機EL素子の有効面積は0.04cm²であった。

30

（評価）以上のように作製した有機EL素子を、真空中（133.3×10⁻³Pa（10⁻³Torr））でITO電極側をプラス、Mg-Ag背面電極をマイナスとして直流電圧を印加し、発光について測定を行い、このときの最高輝度、および発光色を評価した。それらの結果を表20に示す。また、乾燥窒素中で有機EL素子の発光寿命の測定を行った。発光寿命の評価は、初期輝度が50cd/m²となるように電流値を設定し、定電流駆動により輝度が初期値から半減するまでの時間を素子寿命（hour）とした。この時の駆動電流密度を素子寿命と共に表20に示す。

【0098】

【表20】

	最高輝度 (cd/m ²)	発光色	駆動電流密度 (mA/cm ²)	素子寿命 (hour)
実施例 1	740	緑	7.0	30
実施例 2	500	緑	6.8	32
実施例 3	520	赤	6.9	28
実施例 4	800	緑	6.6	31
実施例 5	620	緑	6.5	31
実施例 6	580	赤	7.2	26
比較例 1	480	緑	9.5	18
比較例 2	450	赤	9.8	15

【0099】表20の結果から実施例、比較例から、上記一般式(1-1)および(1-2)で示される構造から選択された少なくとも1種を部分構造として含む繰返し構造単位からなるホール輸送性ポリエステルは、有機EL素子に好適なイオン化ポテンシャルおよびホール移動度を持ち、また、スピンコーティング法、ディップ法等を用いて良好な薄膜を形成することが可能であることがわかり、これを用いて形成された本発明の有機EL素子は、十分に高い輝度を示し、また、膜厚を比較的厚く設定できるため、ピンホール等の不良も少なく、大面積化も容易であり、しかも向上した耐久性を有することもわかる。

【0100】

【発明の効果】以上、本発明によれば、十分な輝度を有し、安定性および耐久性に優れ、且つ大面積化可能であり製造容易な有機EL素子を提供することができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明の有機電界発光素子の層構成の一例を示した概略構成図である。

【図2】 本発明の有機電界発光素子の層構成の他の一例を示した概略構成図である。

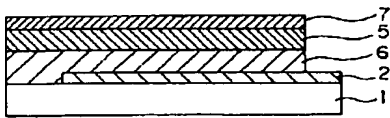
【図3】 本発明の有機電界発光素子の層構成の他の一例を示した概略構成図である。

【図4】 本発明の有機電界発光素子の層構成の他の一例を示した概略構成図である。

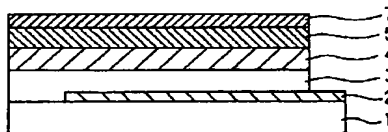
【符号の説明】

- 1 透明絶縁体基板
- 2 透明電極
- 3 ホール輸送層
- 4 発光層
- 5 電子輸送層
- 6 キャリア輸送能を持つ発光層
- 7 背面電極

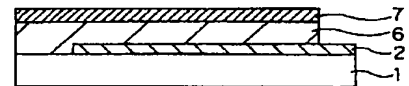
【図1】



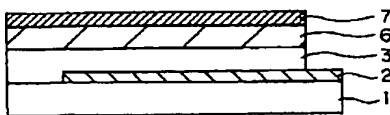
【図2】



【図3】



【図4】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.⁷

H05B 33/14

識別記号

F I

H05B 33/14

テマコード(参考)

B

(72)発明者 奥田 大輔
神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士ゼロ
ックス株式会社内

(72)発明者 米山 博人
神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士ゼロ
ックス株式会社内

(72)発明者 関 三枝子
神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士ゼロ
ックス株式会社内

(72)発明者 真下 清和
神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士ゼロ
ックス株式会社内

(72)発明者 阿形 岳
神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士ゼロ
ックス株式会社内

(72)発明者 佐藤 克洋
神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士ゼロ
ックス株式会社内

(72)発明者 額田 克己
神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士ゼロ
ックス株式会社内

(72)発明者 岩崎 真宏
神奈川県南足柄市竹松1600番地 富士ゼロ
ックス株式会社内

Fターム(参考) 3K007 AB02 AB03 AB04 AB11 AB18
BA06 CA01 CB01 DA01 DB03
EB00
4J002 CF131 EE056 ES006 EU216
GP00
4J029 AA01 AB01 AB04 AC02 AE04
AE18 JC052 JC062